

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/009310

International filing date: 17 May 2005 (17.05.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-151035  
Filing date: 20 May 2004 (20.05.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 16 June 2005 (16.06.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 5 月 2 0 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 1 5 1 0 3 5

パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号  
J P 2 0 0 4 - 1 5 1 0 3 5  
The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

出 願 人  
Applicant(s): 株式会社半導体エネルギー研究所

2 0 0 5 年 6 月 1 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



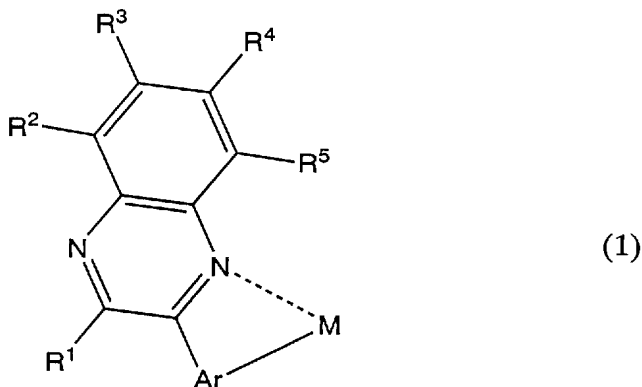
【書類名】 特許願  
【整理番号】 P007759  
【提出日】 平成16年 5月20日  
【あて先】 特許庁長官 今井 康夫 殿  
【国際特許分類】 H05B 33/14  
【発明者】  
    【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内  
    【氏名】 大澤 信晴  
【発明者】  
    【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内  
    【氏名】 安部 寛子  
【発明者】  
    【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内  
    【氏名】 井上 英子  
【発明者】  
    【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内  
    【氏名】 下垣 智子  
【発明者】  
    【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内  
    【氏名】 瀬尾 哲史  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000153878  
    【氏名又は名称】 株式会社半導体エネルギー研究所  
【代理人】  
    【識別番号】 100103159  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 加茂 裕邦  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 067667  
    【納付金額】 16,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 0207020

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

一対の電極間に、下記一般式（１）で表される部分構造を有する有機金属錯体と該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物を含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 1】

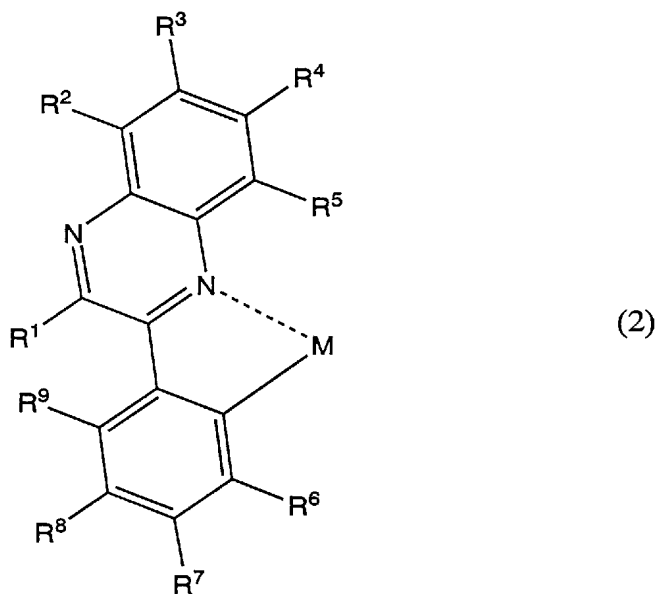


（式中、 $R^1 \sim R^5$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また  $Ar$  は電子吸引性の置換基を有するアリール基または電子吸引性の置換基を有する複素環基を表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表す。）

【請求項 2】

一対の電極間に、下記一般式（２）で表される部分構造を有する有機金属錯体と該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物を含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 2】



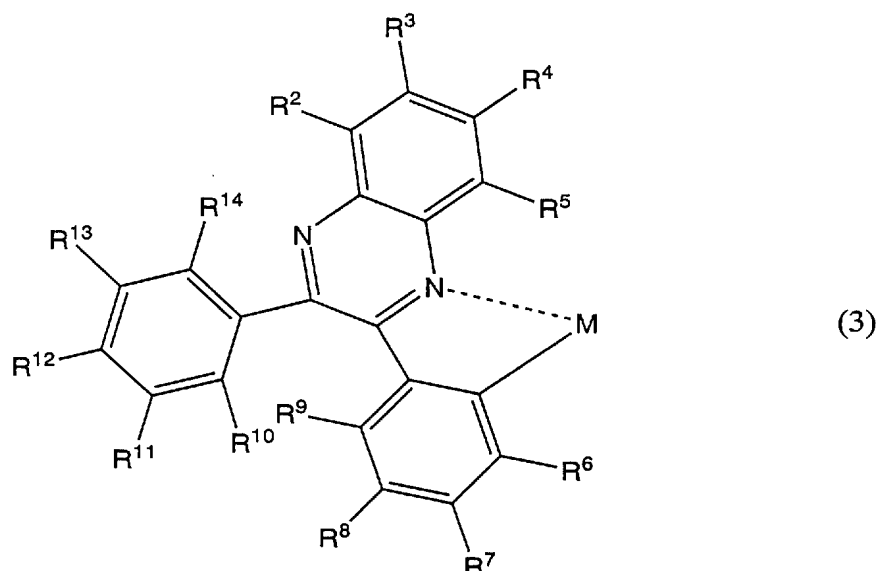
（式中、 $R^1 \sim R^9$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。ただし、 $R^6 \sim R^9$  の少なくとも一つは、電子吸引性の置換基を表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表す。）

【請求項 3】

一対の電極間に、下記一般式（３）で表される部分構造を有する有機金属錯体と該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物を含む発光層を有することを特徴とする

る発光素子。

【化3】

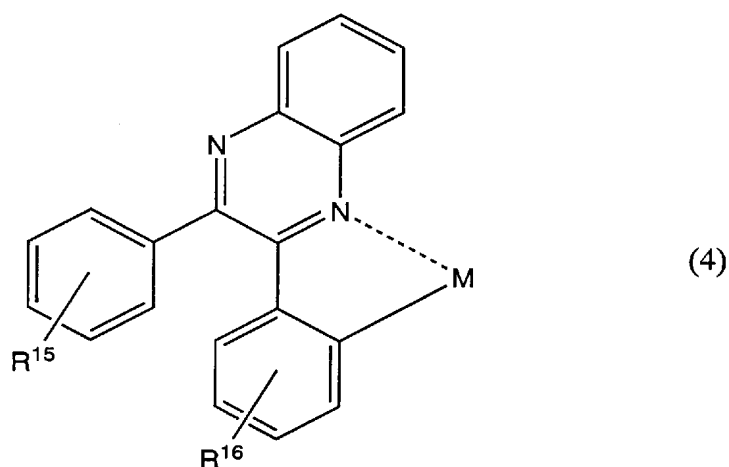


(式中、 $R^2 \sim R^{14}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。)

【請求項4】

一対の電極間に、下記一般式(4)で表される部分構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物を含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化4】

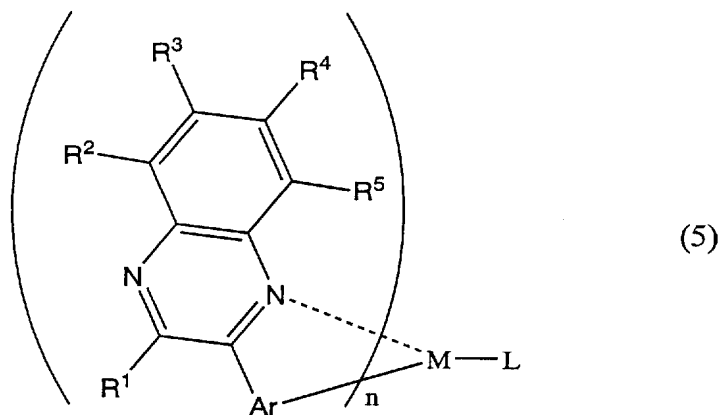


(式中、 $R^{15}$  および  $R^{16}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。)

【請求項5】

一対の電極間に、下記一般式(5)で表される有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物を含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 5】

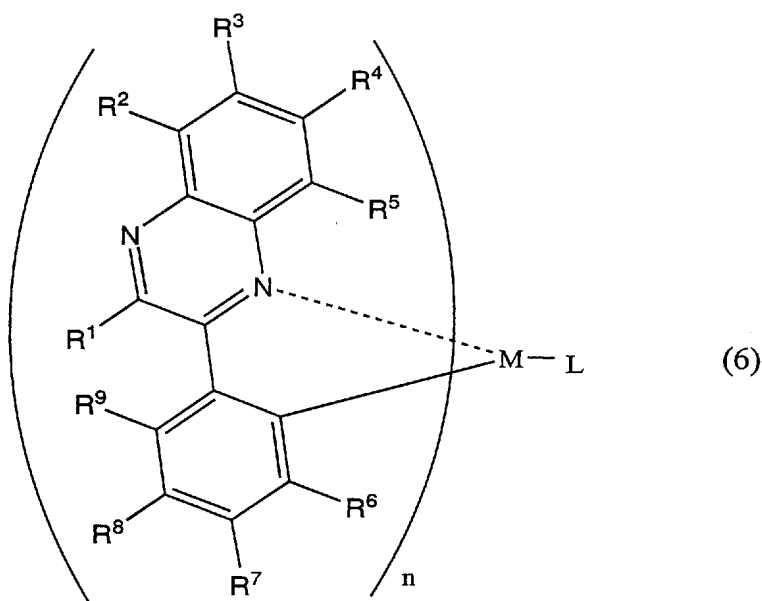


(式中、 $R^1 \sim R^5$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また  $Ar$  は電子吸引性の置換基を有するアリール基または電子吸引性の置換基を有する複素環基を表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表し、前記  $M$  が第 9 族元素の場合は  $n = 2$ 、第 10 族元素の場合は  $n = 1$  となる。 $L$  はモノアニオン性の配位子を表す。)

【請求項 6】

一対の電極間に、下記一般式 (6) で表される有機金属錯体と該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物を含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 6】

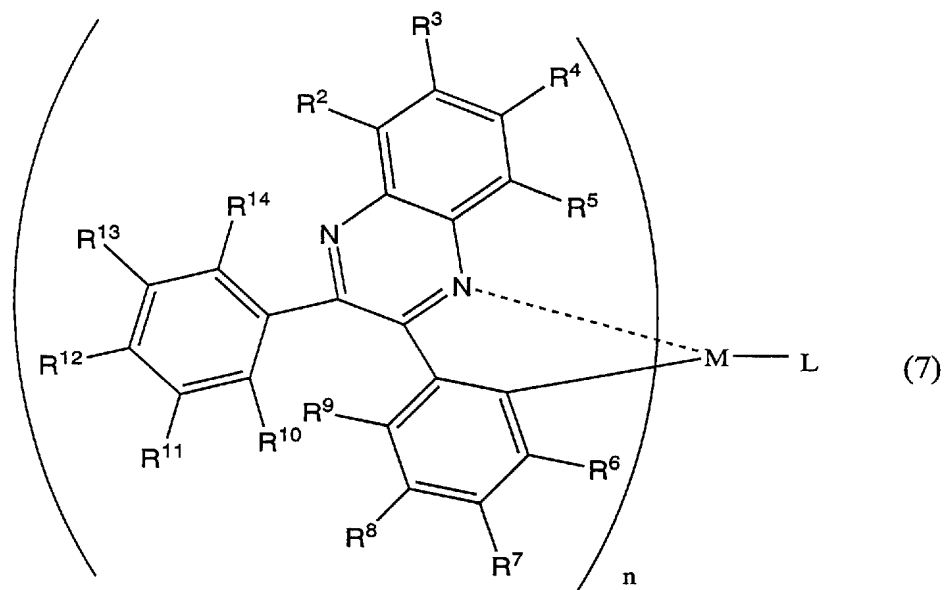


(式中、 $R^1 \sim R^9$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。ただし、 $R^6 \sim R^9$  の少なくとも一つは、電子吸引性の置換基を表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表し、前記  $M$  が第 9 族元素の場合は  $n = 2$ 、第 10 族元素の場合は  $n = 1$  となる。 $L$  はアニオン性の配位子を表す。)

【請求項 7】

一対の電極間に、下記一般式 (7) で表される有機金属錯体と該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物を含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 7】

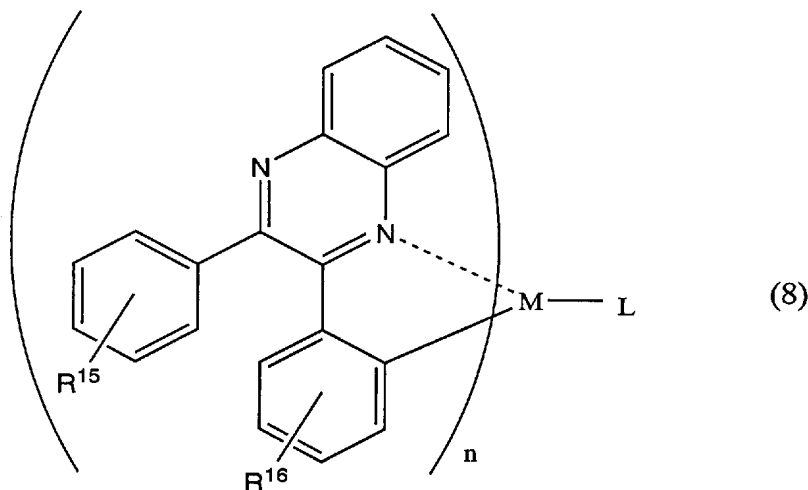


(式中、 $R^2 \sim R^{14}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、前記Mが第9族元素の場合は $n = 2$ 、第10族元素の場合は $n = 1$ となる。Lはアニオン性の配位子を表す。)

【請求項 8】

一対の電極間に、下記一般式(8)で表される有機金属錯体と該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物を含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 8】



(式中、 $R^{15}$  および  $R^{16}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、前記Mが第9族元素の場合は $n = 2$ 、第10族元素の場合は $n = 1$ となる。Lはアニオン性の配位子を表す。)

【請求項 9】

請求項 1 ～ 8 のいずれか 1 項に記載の発光素子において、前記有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物が、4, 4'-ビス【N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ】ビフェニルまたはトリス(8-キノリノラト)アルミニウムであることを特徴

とする発光素子。

【請求項 10】

請求項 5～8 のいずれか 1 項に記載の発光素子において、前記アニオン性の配位子が、 $\beta$ -ジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、カルボキシル基を有するモノアニオン性の二座配位子またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座配位子であることを特徴とする発光素子。

【請求項 11】

請求項 1～8 のいずれか 1 項に記載の発光素子において、前記有機金属錯体と共に、前記有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きく  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上の電子移動度を有する第 1 の化合物、または前記有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きく  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上のホール移動度を有する第 2 の化合物のいずれかを含むことを特徴とする発光素子。

【請求項 12】

請求項 1～8 のいずれか 1 項に記載の発光素子において、前記有機金属錯体と共に、前記有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きく  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上の電子移動度を有する第 1 の化合物と、前記有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きく  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上のホール移動度を有する第 2 の化合物とを含むことを特徴とする発光素子。

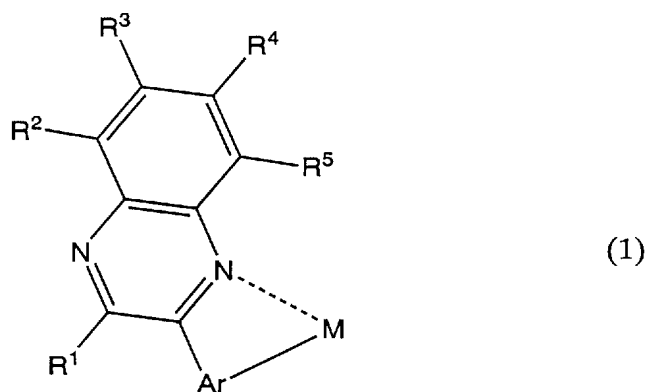
【請求項 13】

請求項 11 または 12 に記載の発光素子において、前記第 1 の化合物は金属錯体であり、前記第 2 の化合物は芳香族アミン化合物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 14】

一対の電極間に、下記一般式 (9) で表される部分構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 9】



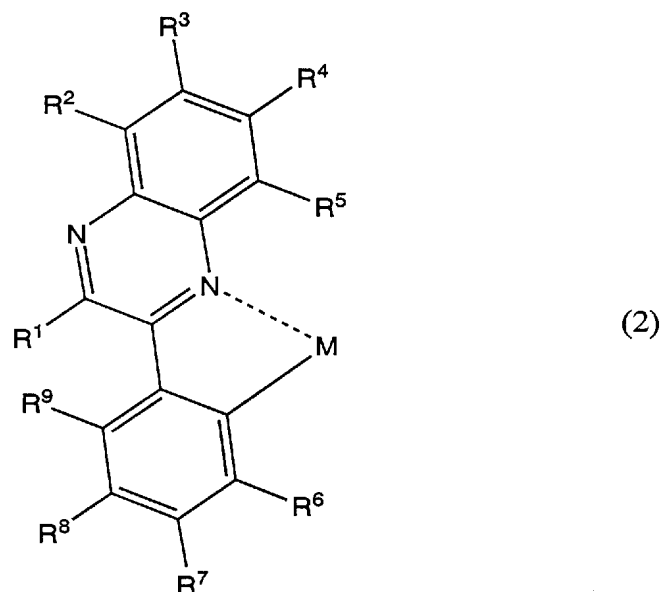
(式中、 $R^1 \sim R^5$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また  $Ar$  は、電子吸引性置換基を有するアリール基または電子吸引性置換基を有する複素環基を表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表す。)

【請求項 15】

一対の電極間に、下記一般式 (10) で表される有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子。



【化 1 0】

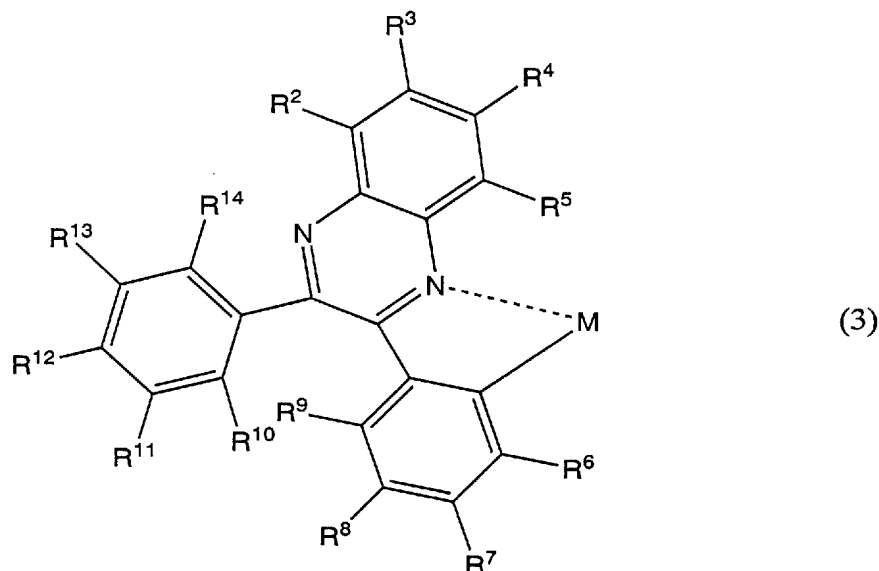


(式中、 $R^1 \sim R^9$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表す。)

【請求項 16】

一対の電極間に、下記一般式 (11) で表される構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 1 1】



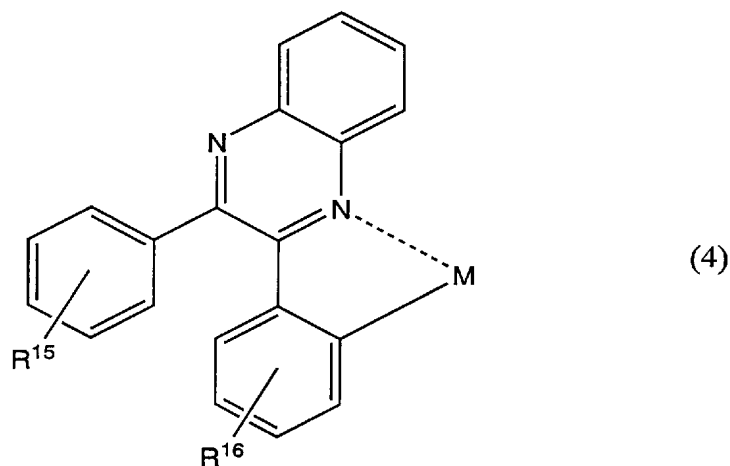
(式中、 $R^1 \sim R^{14}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表す。)

【請求項 17】

一対の電極間に、下記一般式 (12) で表される構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発

光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 1 2】

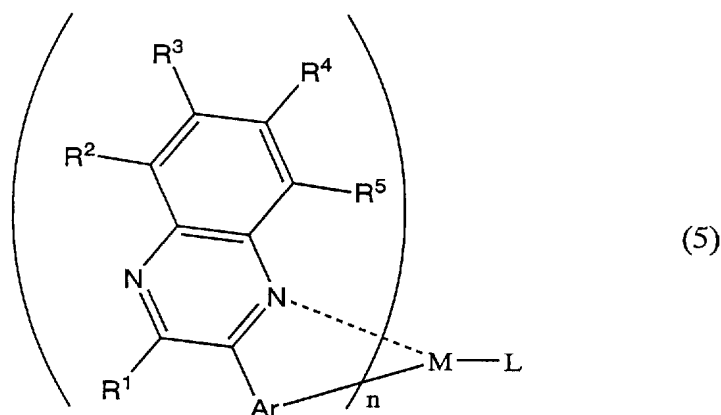


(式中、 $R^{15} \sim R^{16}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。)

【請求項 1 8】

一対の電極間に、下記一般式(13)で表される有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

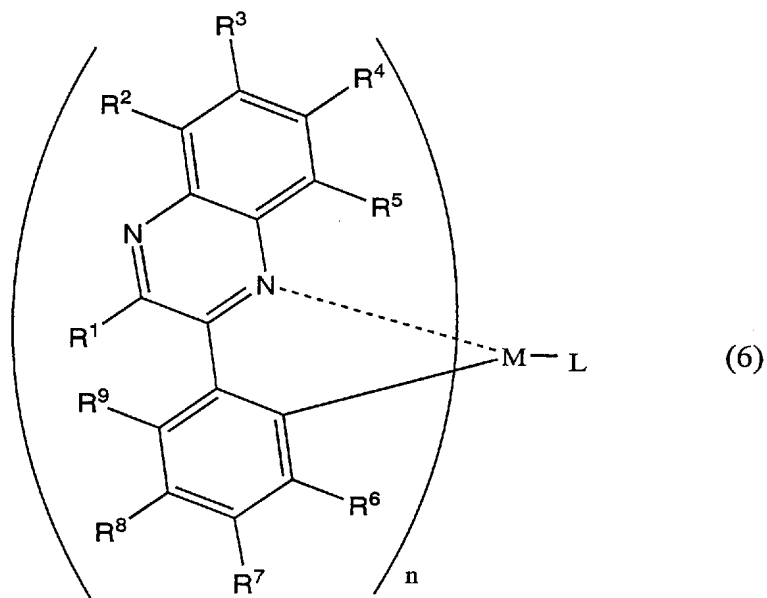
【化 1 3】



(式中、 $R^1 \sim R^5$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。またArは、電子吸引性置換基を有するアリール基または電子吸引性置換基を有する複素環基を表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、前記Mが第9族元素の場合は $n = 2$ 、第10族元素の場合は $n = 1$ となる。Lはモノアニオン性の配位子を表す。)

【請求項 1 9】

一対の電極間に、下記一般式(14)で表される有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

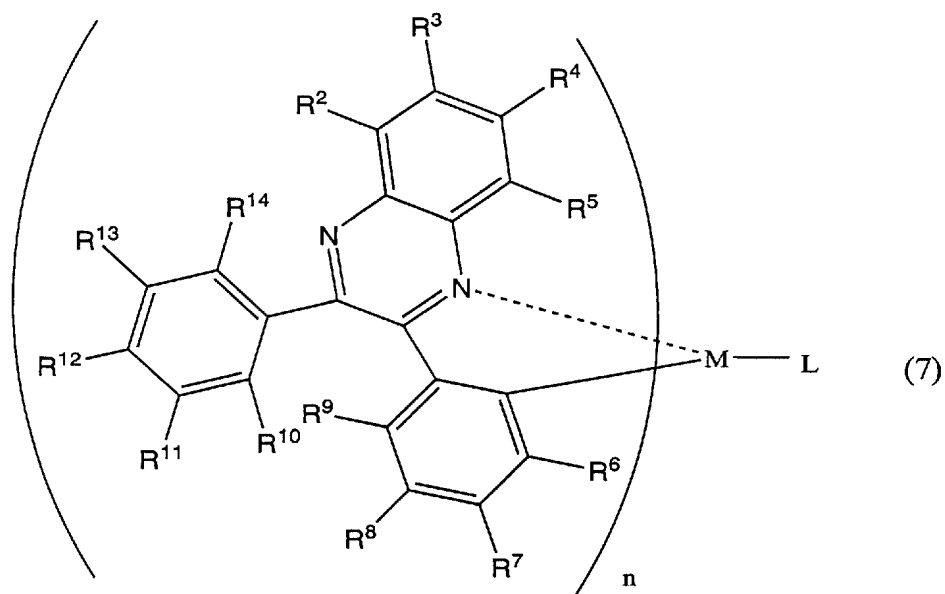


(式中、 $R^1 \sim R^9$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表し、前記  $M$  が第 9 族元素の場合は  $n = 2$ 、第 10 族元素の場合は  $n = 1$  となる。 $L$  はモノアニオン性の配位子を表す。)

## 【請求項 20】

一対の電極間に、下記一般式 (15) で表される構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

## 【化 1 5】

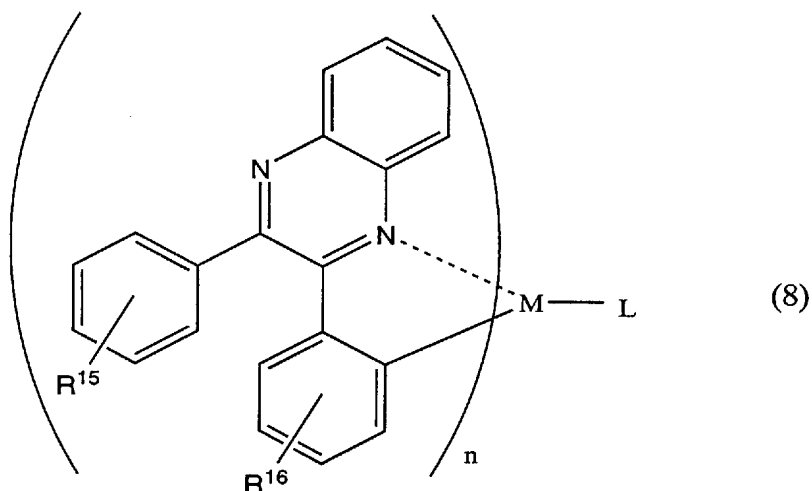


(式中、 $R^1 \sim R^{14}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表し、前記  $M$  が第 9 族元素の場合は  $n = 2$ 、第 10 族元素の場合は  $n = 1$  となる。 $L$  はモノアニオン性の配位子を表す。)

【請求項 2 1】

一対の電極間に、下記一般式（16）で表される構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりも該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子。

【化 1 6】



（式中、 $R^1 \sim R^{14}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表し、前記  $M$  が第 9 族元素の場合は  $n = 2$ 、第 10 族元素の場合は  $n = 1$  となる。 $L$  はモノアニオン性の配位子を表す。）

【請求項 2 2】

請求項 1 8 ～ 2 1 のいずれか 1 項に記載の発光素子において、前記アニオン性の配位子が、 $\beta$ -ジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、カルボキシル基を有するモノアニオン性の二座配位子またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座配位子であることを特徴とする発光素子。

【請求項 2 3】

請求項 1 4 ～ 2 1 のいずれか 1 項に記載の発光素子において、前記有機金属錯体と共に、前記有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく電子親和力が小さく且つ  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上の電子移動度を有する第 1 の化合物と、または前記有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく電子親和力が小さく且つ  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上のホール移動度を有する第 2 の化合物のいずれかを含むことを特徴とする発光素子。

【請求項 2 4】

請求項 1 4 ～ 2 1 のいずれか 1 項に記載の発光素子において、前記有機金属錯体と共に、前記有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく電子親和力が小さく且つ  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上の電子移動度を有する第 1 の化合物と、前記有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく電子親和力が小さく且つ  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上のホール移動度を有する第 2 の化合物とを含むことを特徴とする発光素子。

【請求項 2 5】

請求項 2 3 または 2 4 に記載の発光素子において、前記第 1 の化合物は金属錯体であり、前記第 2 の化合物は芳香族アミン化合物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 2 6】

請求項 1 ～ 2 6 のいずれか 1 項に記載の発光素子において、ホール注入層、ホール輸送層、ホールブロッキング層、電子輸送層、電子注入層の中の少なくとも一つの層をさらに有することを特徴とする発光素子。

【請求項 2 7】

請求項 1 ～ 2 6 のいずれか 1 項に記載の発光素子を用いた発光装置。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 発光素子および発光装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、励起三重項状態を発光に変換できる有機金属錯体を用いた発光素子およびその発光素子を用いた発光装置に関する。

【背景技術】

【0002】

有機化合物を用いた発光素子は、電界を加えることで有機化合物を含む層（または有機化合物膜）が発光する素子である。その発光機構は、電極間に有機化合物膜を挟んで電圧を印加することにより、陰極から注入された電子および陽極から注入されたホールが有機化合物膜中で再結合して分子励起子を形成し、その分子励起子が基底状態に戻る際にエネルギーを放出して発光すると言われている。

【0003】

このような発光素子において、通常、有機化合物膜は $1\mu\text{m}$ を下回るほどの薄膜で形成される。また、このような発光素子は、有機化合物膜そのものが光を放出する自発光型の素子であるため、従来の液晶ディスプレイに用いられているようなバックライトも必要ない。従って、このような発光素子は極めて薄型軽量に作製できることが大きな利点である。また、例えば $100\sim 200\text{nm}$ 程度の有機化合物膜において、キャリアを注入してから再結合に至るまでの時間は、有機化合物膜のキャリア移動度を考えると数十ナノ秒程度であり、キャリアの再結合から発光までの過程を含めてもマイクロ秒以内のオーダーで発光に至る。従って、非常に応答速度が速いことも特長の一つである。さらに、このような発光素子はキャリア注入型の発光素子であるため、直流電圧での駆動が可能であり、ノイズが生じにくい。駆動電圧に関しては、まず有機化合物膜の厚みを $100\text{nm}$ 程度の均一な超薄膜とし、また、有機化合物膜に対するキャリア注入障壁を小さくするような電極材料を選択し、さらにはヘテロ構造（ここでは二層構造）を導入することによって、 $5\sim 5\text{V}$ で $100\text{cd/m}^2$ の十分な輝度が達成されている（例えば、非特許文献1参照）。

【0004】

【非特許文献1】 C. W. タン、外1名、アプライド フィジックス レターズ、  
vol. 51、No. 12、913-915（1987）

【0005】

こういった薄型軽量、高速応答性、直流低電圧駆動などの素子特性に加え、有機化合物を用いた発光素子は、その発光色のバリエーションに富んでいることも大きな利点の一つと言える。その要因は、有機化合物自体の多様性である。すなわち、分子設計（例えば置換基の導入）等により様々な発光色の材料を開発できるという柔軟性が、色彩の豊かさを生んでいる。この色彩の豊かさを活かした発光素子の最も大きな応用分野は、フルカラーのフラットパネルディスプレイであると言える。なぜなら、赤色、緑色、青色という光の三原色を発光できる有機化合物は多数存在するため、それらをバナーニングすることによって、容易にフルカラー化が達成できるからである。

【0006】

前述したような、薄型軽量、高速応答性、直流低電圧駆動といった素子特性も、フラットパネルディスプレイにふさわしい特性と言える。しかし、近年さらなる発光効率を上げる試みとして、蛍光材料ではなく燐光材料を用いることが挙げられている。有機化合物を用いた発光素子においては、分子励起子が基底状態に戻る際に発光するが、その発光には励起一重項状態（ $S^*$ ）からの発光（蛍光）と励起三重項状態（ $T^*$ ）からの発光（燐光）が可能であり、蛍光材料を用いた場合は $S^*$ からの発光（蛍光）のみが寄与する。

【0007】

しかしながら、発光素子における $S^*$ と $T^*$ の統計的な生成比率は、 $S^*:T^*=1:3$ であると考えられている（例えば、非特許文献2参照）。従って、蛍光材料を用いた発光素子における内部量子効率（注入したキャリアに対して発生するフォトンの割合）の理論的

限界は、 $S^*:T^*=1:3$ であることを根拠に25%とされている。言い換えれば、蛍光材料を用いた発光素子の場合、注入したキャリアのうち少なくとも75%は無駄に消費されるのである。

【0008】

【非特許文献2】筒井哲夫、「応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会・第3回講習会テキスト」、P. 31 (1993)

【0009】

逆に言えば、 $T^*$ からの発光、すなわち燐光を利用できれば発光効率は向上する（単純には3～4倍）と考えられるが、一般的な有機化合物は室温において、 $T^*$ からの発光（燐光）は観測されず、通常は $S^*$ からの発光（蛍光）のみが観測される。有機化合物の基底状態は通常、一重項基底状態（ $S_0$ ）であるため、 $T^* \rightarrow S_0$ 遷移は禁制遷移となり、 $S^* \rightarrow S_0$ 遷移は許容遷移となるからである。ところが近年、 $T^*$ から基底状態に戻る際に放出されるエネルギー（以下、「三重項励起エネルギー」と言う）を発光に変換できる発光素子が相次いで発表され、その発光効率の高さが注目されている（例えば、非特許文献3参照）。

【0010】

【非特許文献3】テツオ ツツイ、外8名、ジャパニーズ ジャーナル オブ アプライド フィジックス、vol. 38、L1502-L1504 (1999)

【0011】

非特許文献3ではイリジウムを中心金属とする金属錯体（以下、「イリジウム錯体」と記す。）を発光物質として用いており、第3遷移系列元素を中心金属として導入していることが特徴であると言える。これらは、室温で励起三重項状態を発光に変換できる材料（以下、「三重項発光材料」と言う。）である。非特許文献3に示されるとおり、三重項励起エネルギーを発光に変換できる有機化合物を用いた発光素子は、従来よりも高い内部量子効率を達成できる。そして、内部量子効率が高くなれば、発光効率（ $\text{lm/W}$ ）も向上する。

【0012】

しかしながら、非特許文献3の報告によると、初期輝度を $500 \text{ cd/m}^2$ に設定した定電流駆動時の輝度の半減期は170時間程度であり、三重項発光材料を用いた発光素子は素子寿命に問題がある。一方、一重項発光材料を用いた発光素子の場合、初期輝度を $500 \text{ cd/m}^2$ に設定した定電流駆動時の輝度の半減期は数千時間から一万時間にも及び、素子寿命の点では実用的な域に達していると言ってもよい。

【0013】

以上のことから、三重項発光材料を用いた発光素子においては、長時間駆動可能な素子が望まれている。それにより、発光効率が高い上に、素子寿命の長い発光素子が得られるためである。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0014】

本発明は、以上のような背景から、そのような従来技術の問題点を解決するためになされたものであり、励起三重項状態を発光に変換できる有機金属錯体を用いた発光素子において、長時間の駆動が可能な、すなわち発光効率が高く、素子寿命の長い発光素子を提供することを課題とする。また、前記発光素子を用いてなる消費電力の低い発光装置を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0015】

本発明者らは、上述の課題を解決すべく鋭意研究をすすめた結果、陽極と陰極とからなる一対の電極と、該一対の電極間に一つまたは複数の有機化合物を含む層を設けてなる発光素子において、前記有機化合物を含む層のうち少なくとも一層が特定の化合物を含有することにより長時間駆動可能、つまり発光効率が高く素子寿命の長い発光素子が得られる

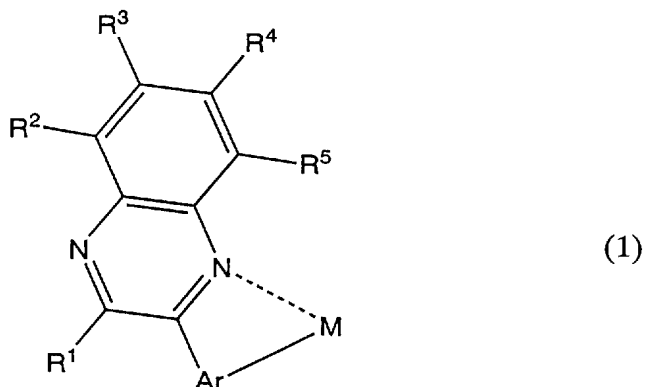
ことを見い出し、本発明を完成するに至ったものである。

【００１６】

すなわち、本発明の第１発明は、一対の電極間に、下記一般式（１）で表される部分構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物または該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子である。

【００１７】

【化１】



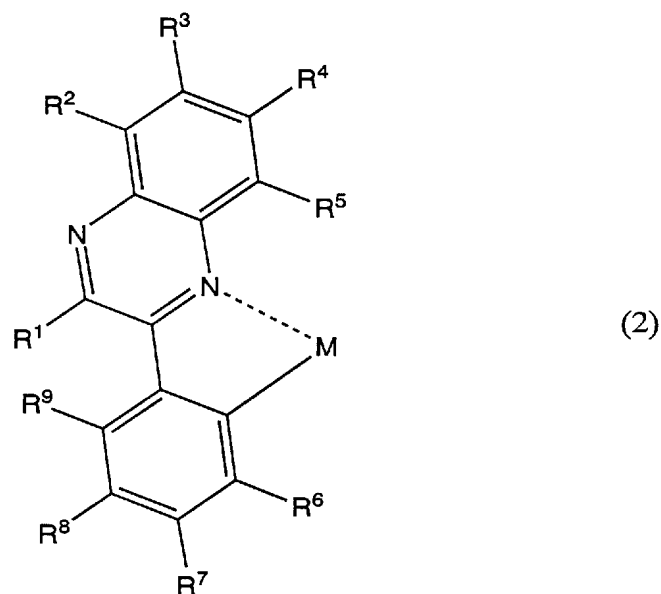
（式中、 $R^1 \sim R^5$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また  $Ar$  は電子吸引性の置換基を有するアリール基または電子吸引性の置換基を有する複素環基を表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表す。）

【００１８】

本発明の第２発明は、一対の電極間に、下記一般式（２）で表される部分構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物または該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子である。

【００１９】

【化２】



（式中、 $R^1 \sim R^9$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。ただし、 $R^6 \sim R^9$  のいずれか一つ

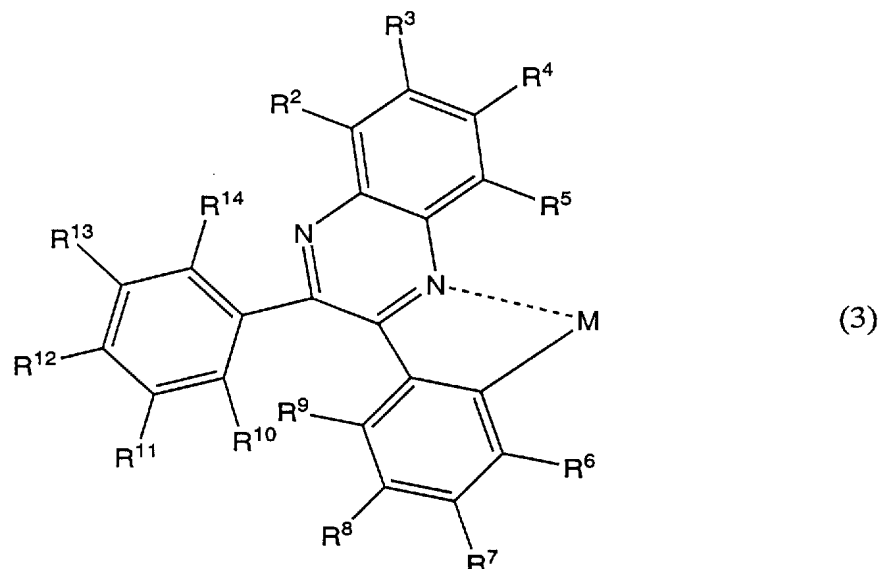
は、電子吸引性の置換基を表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。)

【0020】

本発明の第3発明は、一対の電極間に、下記一般式(3)で表される部分構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物または該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子である。

【0021】

【化3】



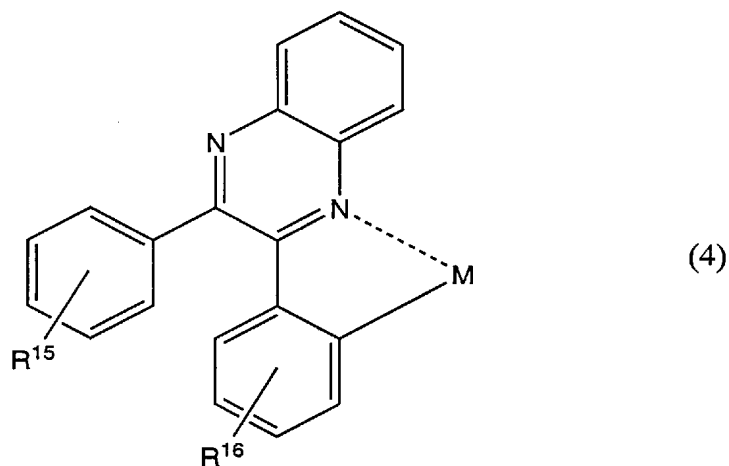
(式中、R<sup>2</sup>～R<sup>14</sup>は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。)

【0022】

本発明の第4発明は、一対の電極間に、下記一般式(4)で表される部分構造を有する有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物または該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子である。

【0023】

【化4】



(式中、R<sup>15</sup>およびR<sup>16</sup>は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ



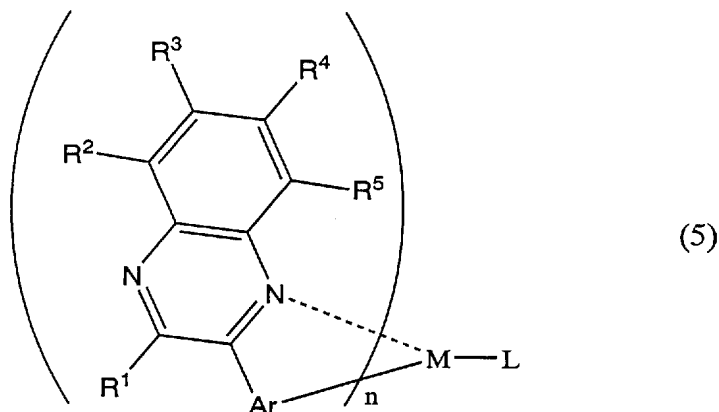
ル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。)

【0024】

本発明の第5発明は、一対の電極間に、下記一般式(5)で表される有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物または該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子である。

【0025】

【化5】



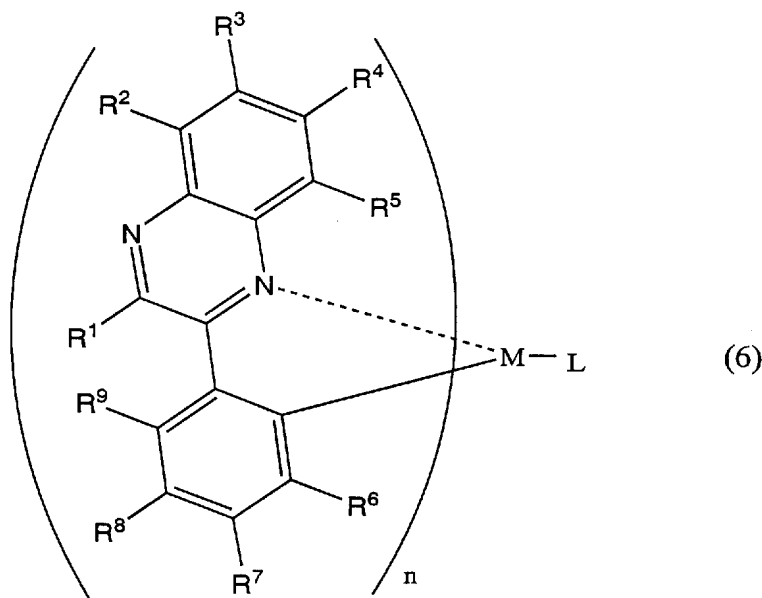
(式中、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。またArは電子吸引性の置換基を有するアリール基または電子吸引性の置換基を有する複素環基を表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、前記Mが第9族元素の場合はn=2、第10族元素の場合はn=1となる。Lはモノアニオン性の配位子を表す。)

【0026】

本発明の第6発明は、一対の電極間に、下記一般式(6)で表される有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物または該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子である。

【0027】

【化 6】



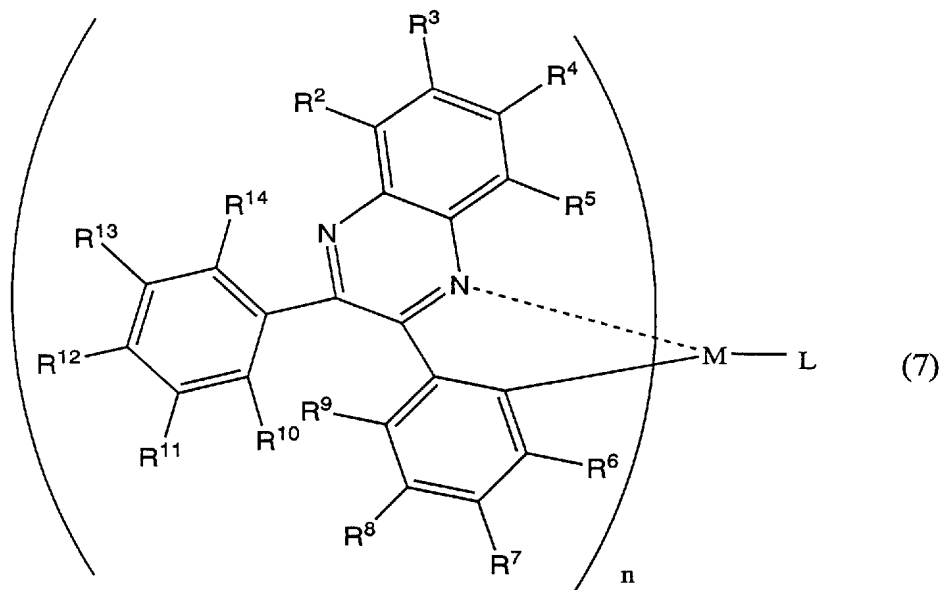
(式中、 $R^1 \sim R^9$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。ただし、 $R^6 \sim R^9$  の少なくとも一つは、電子吸引性の置換基を表す。また、 $M$  は第 9 族元素または第 10 族元素を表し、前記  $M$  が第 9 族元素の場合は  $n = 2$ 、第 10 族元素の場合は  $n = 1$  となる。 $L$  はアニオン性の配位子を表す。)

【0028】

本発明の第 7 発明は、一対の電極間に、下記一般式 (7) で表される有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物または該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子である。

【0029】

【化 7】



(式中、 $R^2 \sim R^{14}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基

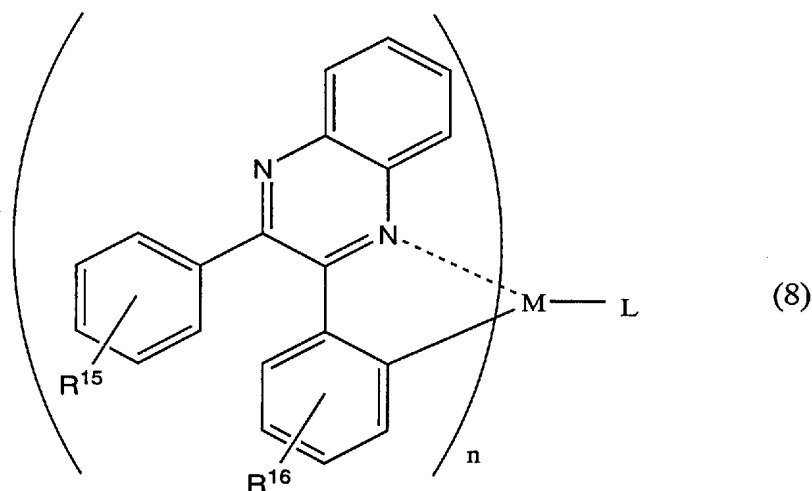
、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、前記Mが第9族元素の場合は $n=2$ 、第10族元素の場合は $n=1$ となる。Lはアニオン性の配位子を表す。)

【0030】

本発明の第8発明は、一対の電極間に、下記一般式(8)で表される有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物または該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層を有することを特徴とする発光素子である。

【0031】

【化8】



(式中、 $R^{15}$ および $R^{16}$ は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、前記Mが第9族元素の場合は $n=2$ 、第10族元素の場合は $n=1$ となる。Lはアニオン性の配位子を表す。)

【0032】

また、本発明(第9)の発光素子は、前記第1～第8のいずれかの発光素子において、有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物が4,4'-ビス〔N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ〕ビフェニルまたはトリス(8-キノリノラト)アルミニウムであることを特徴とする発光素子である。

【0033】

また、本発明(第10)の発光素子は、前記第5～第8のいずれかの発光素子において、アニオン性の配位子が $\beta$ -ジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、カルボキシ基を有するモノアニオン性の二座配位子またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座配位子であることを特徴とする発光素子である。

【0034】

また、本発明(第11)の発光素子は、前記第1～第8のいずれかの発光素子において、有機金属錯体と共に、前記有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きく $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する第1の化合物、および/または、有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きく $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上のホール移動度を有する第2の化合物を含むことを特徴とする発光素子である。

【0035】

また、本発明(第12)の発光素子は、第1～第8のいずれかの発光素子において、有機金属錯体と共に、有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく電子親和力が小さく且つ $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する第1の化合物、および/または、前記有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく電子親和力が小さく且つ $10^{-6}$

$\text{cm}^2/\text{Vs}$  以上のホール移動度を有する第 2 の化合物のいずれかを含むことを特徴とする発光素子である。

【0036】

また、本発明（第 13）の発光素子は、第 11 または第 12 の発光素子において、ホール輸送性の化合物が芳香族アミン化合物で、電子輸送性の化合物が金属錯体であることを特徴とする発光素子である。

【0037】

また、本発明（第 14）の発光素子は、第 1～第 13 のいずれかの発光素子において、ホール注入層、ホール輸送層、ホールブロッキング層、電子輸送層、電子注入層の中の少なくとも一つの層をさらに有することを特徴とする発光素子である。

【0038】

また、本発明の発光装置は、第 1～第 14 のいずれかの発光素子を用いて作製した発光装置である。

【発明の効果】

【0039】

本発明における、前記有機金属錯体とその有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物とを含む発光層を有する発光素子は、長時間駆動が可能であり、発光効率が高く長寿命である。そして、本発明の発光素子を使用した発光装置は、それ故に発光装置として優れた性能を有する。

【発明を実施するための最良の形態】

【0040】

以下、本発明をさらに詳細に説明する。まず、本発明で用いる有機金属錯体について説明する。本発明は、新規な有機金属錯体を提供すると共に、それを用いた発光素子を提供し、またその発光素子を用いた発光装置を提供するものである。

【0041】

前述置換基  $R^1 \sim R^{16}$  の具体例を挙げると以下のとおりである。アシル基としては、アセチル基、プロピオニル基、イソブチリル基、メタクリロイル基等が挙げられる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*iso*-プロピル基、*tert*-ブチル基、オクチル基等が挙げられる。アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基等が挙げられる。アリール基としては、フェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基等が挙げられる。複素環基としては、ピリジル基、ピピリジル基、メチルピリジル基等が挙げられる。電子吸引性の置換基としては、フルオロ基、トリフルオロメチル基、シアノ基等が挙げられる。

【0042】

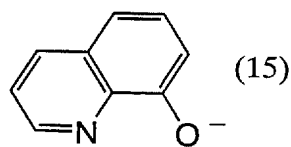
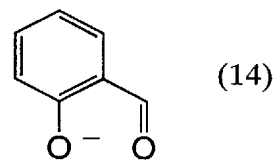
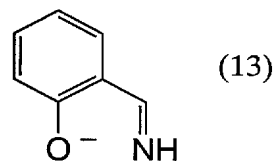
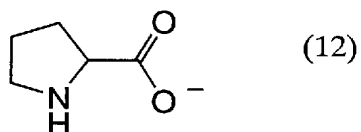
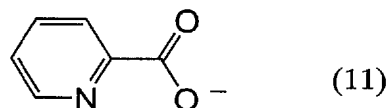
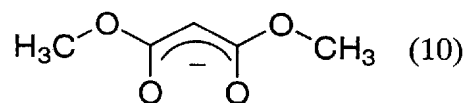
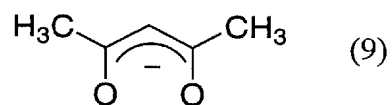
また、第 9 族元素または第 10 族元素の具体例としては、イリジウム、白金などが挙げられる。ただし、これら例示の元素に限定されるものではない。

【0043】

次に、 $\beta$ -ジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、カルボキシ基を有するモノアニオン性の二座配位子、フェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座配位子の具体例としては以下（9）～（15）の例が挙げられる。

【0044】

【化 9】

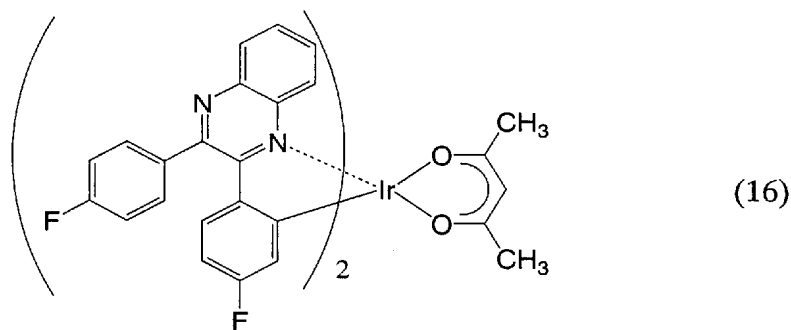


【 0 0 4 5 】

また、一般式（１）～（４）で表される部分構造を有する有機金属錯体、すなわち一般式（５）～（８）で表される有機金属錯体について代表例を挙げる。ただし、これらの化合物に限定されるものでない。

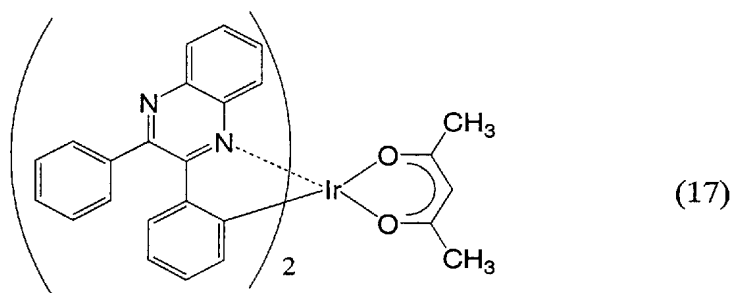
【 0 0 4 6 】

【化 1 0】



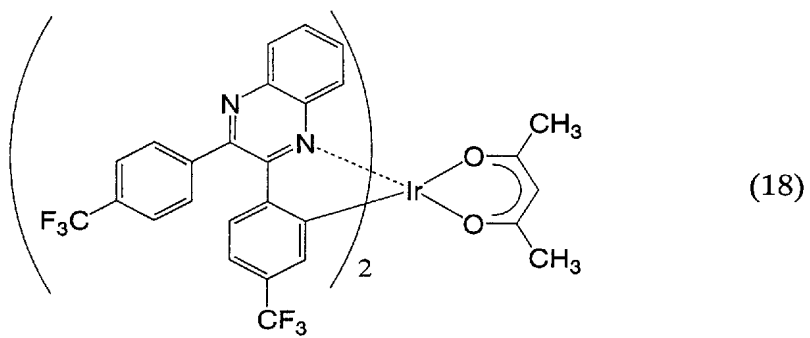
【 0 0 4 7 】

【化 1 1】



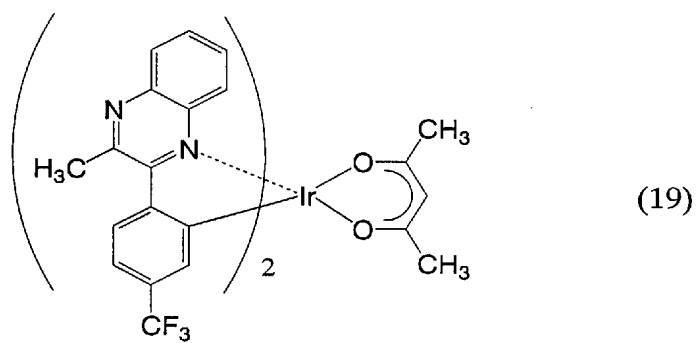
【 0 0 4 8】

【化 1 2】



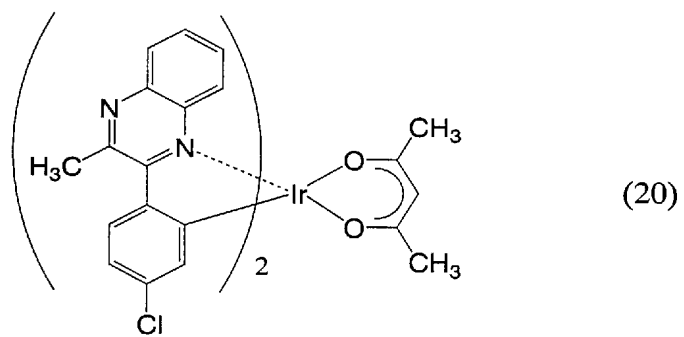
【 0 0 4 9】

【化 1 3】



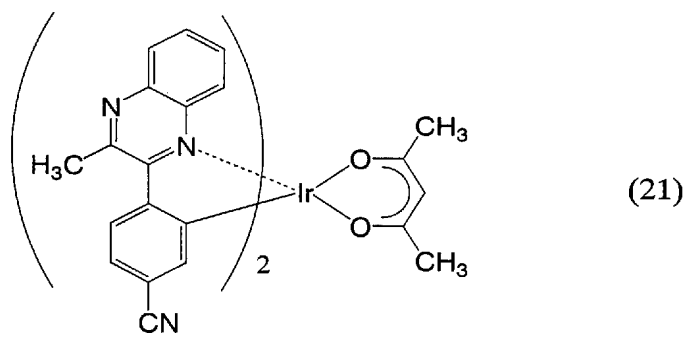
【 0 0 5 0】

【化 1 4】



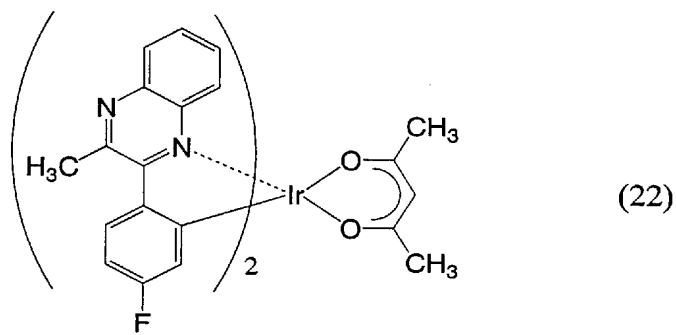
【 0 0 5 1 】

【 化 1 5 】



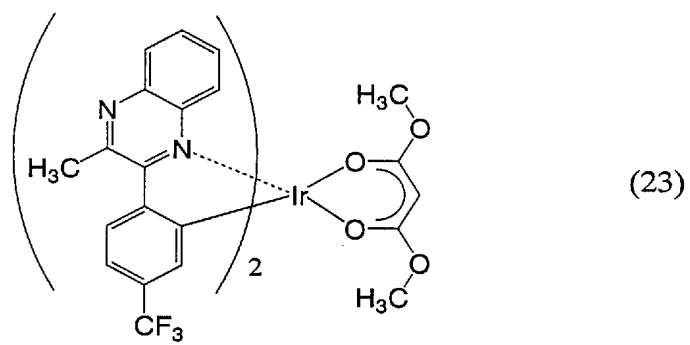
【 0 0 5 2 】

【 化 1 6 】



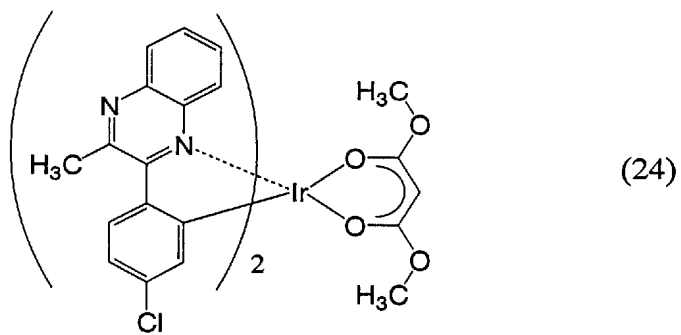
【 0 0 5 3 】

【 化 1 7 】



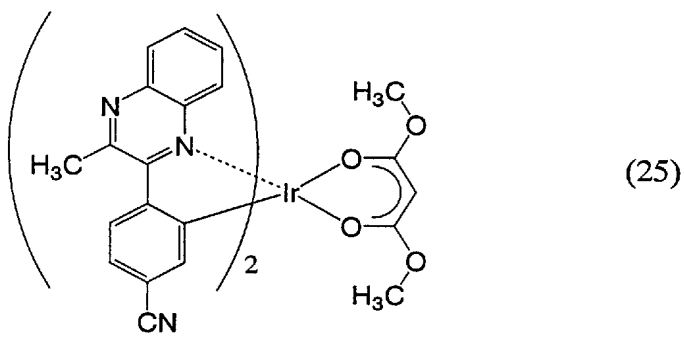
【 0 0 5 4 】

【化 1 8】



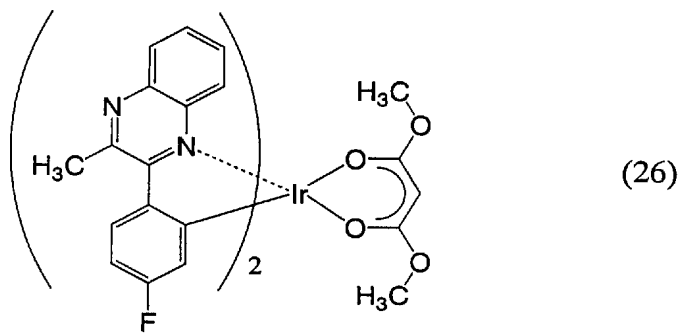
【 0 0 5 5】

【化 1 9】



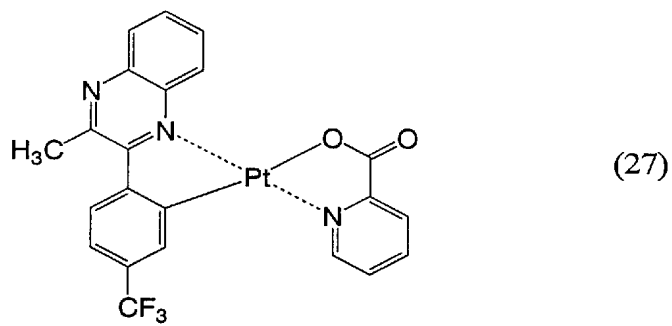
【 0 0 5 6】

【化 2 0】



【 0 0 5 7】

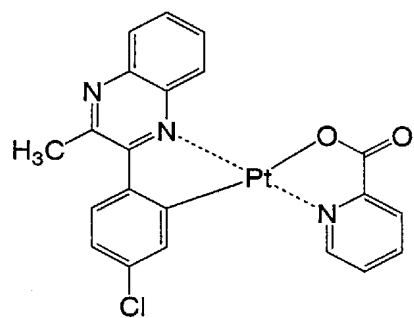
【化 2 1】





【 0 0 5 8 】

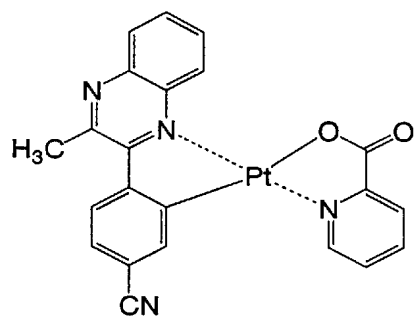
【 化 2 2 】



(28)

【 0 0 5 9 】

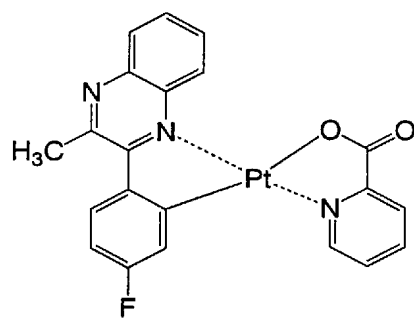
【 化 2 3 】



(29)

【 0 0 6 0 】

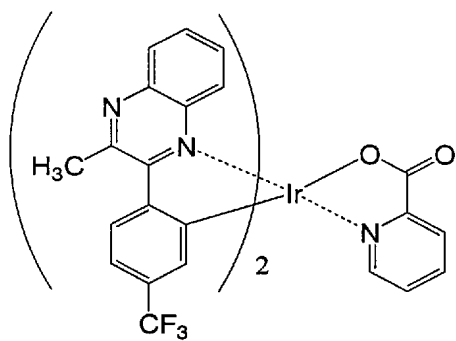
【 化 2 4 】



(30)

【 0 0 6 1 】

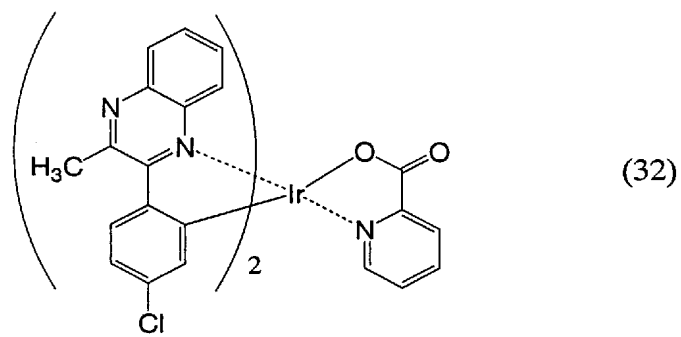
【 化 2 5 】



(31)

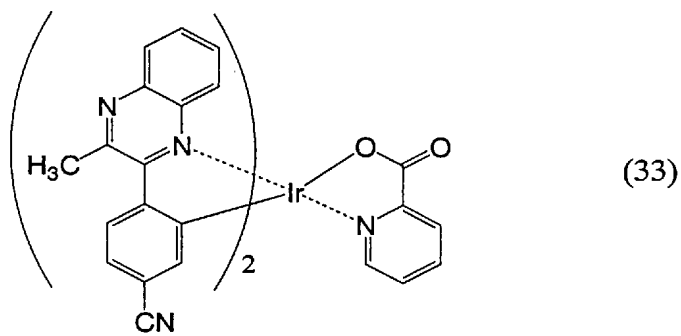
【 0 0 6 2 】

【化 2 6】



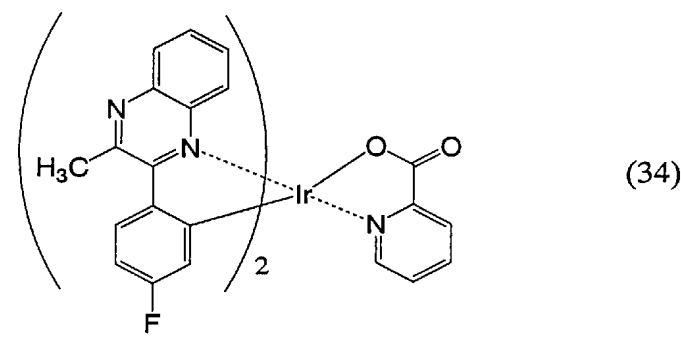
【 0 0 6 3】

【化 2 7】



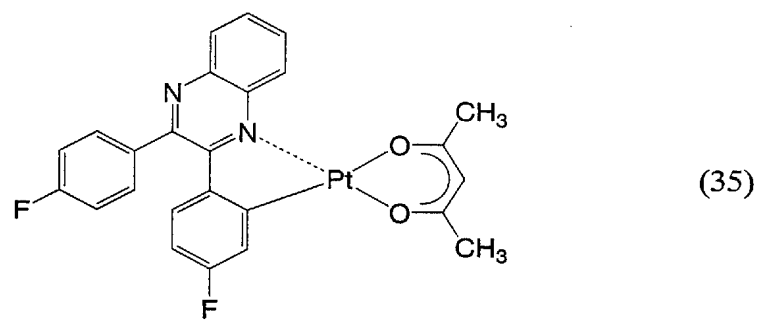
【 0 0 6 4】

【化 2 8】



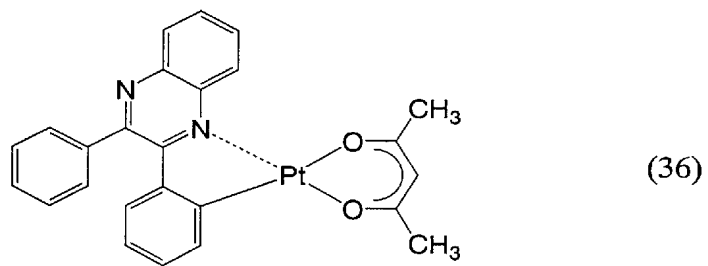
【 0 0 6 5】

【化 2 9】

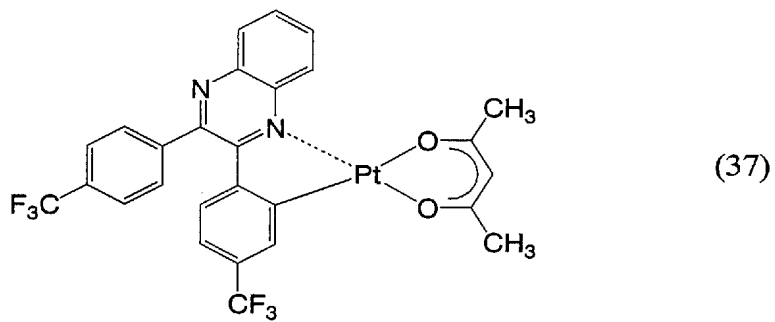


【 0 0 6 6】

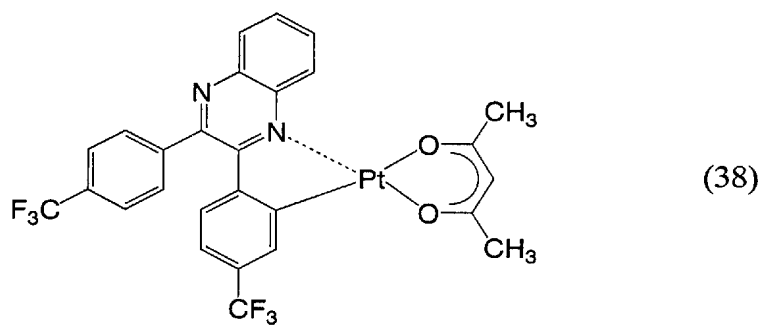
【化 3 0】



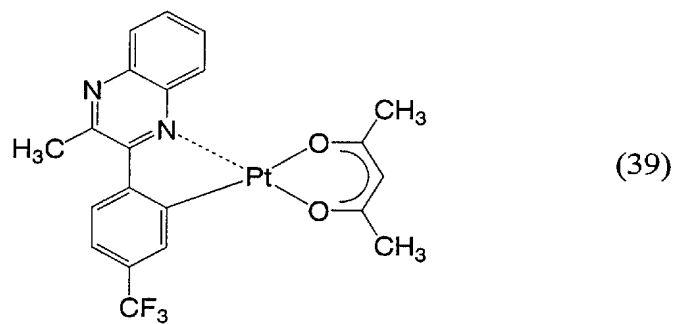
【 0 0 6 7】  
【化 3 1】



【 0 0 6 8】  
【化 3 2】

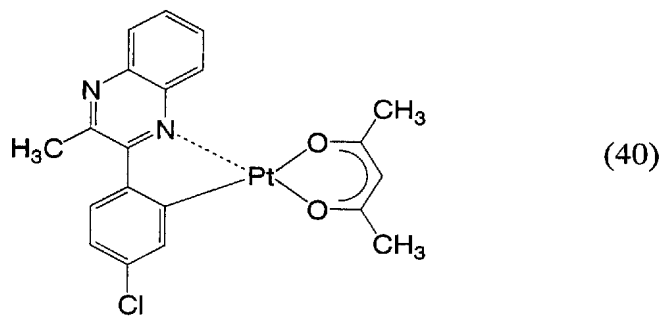


【 0 0 6 9】  
【化 3 3】



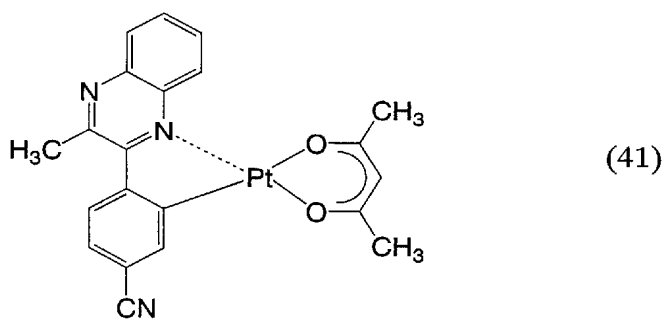
【 0 0 7 0】

【化 3 4】



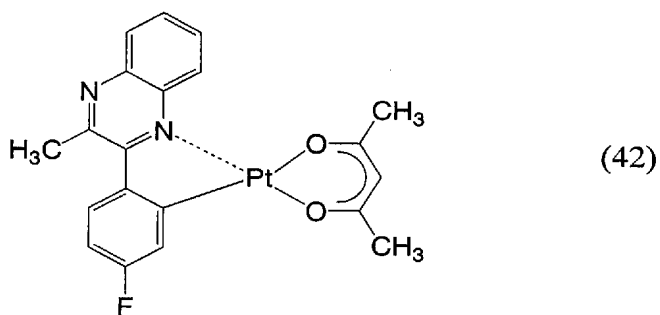
【 0 0 7 1】

【化 3 5】



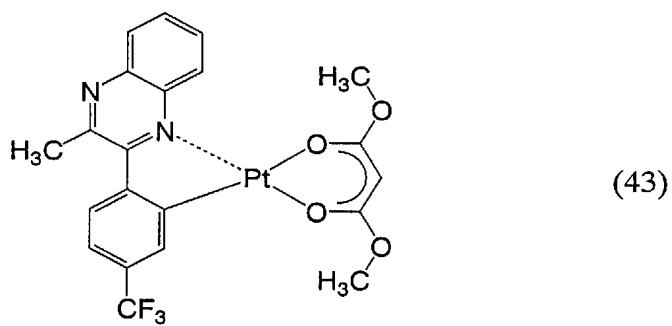
【 0 0 7 2】

【化 3 6】



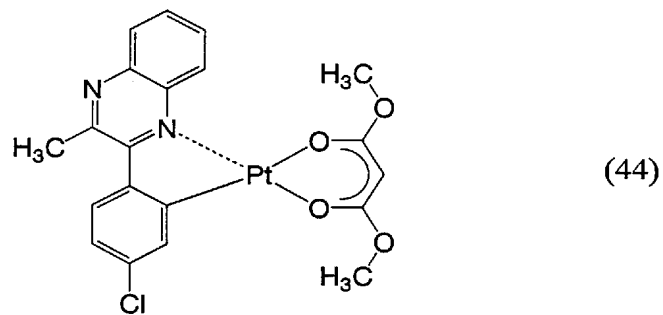
【 0 0 7 3】

【化 3 7】

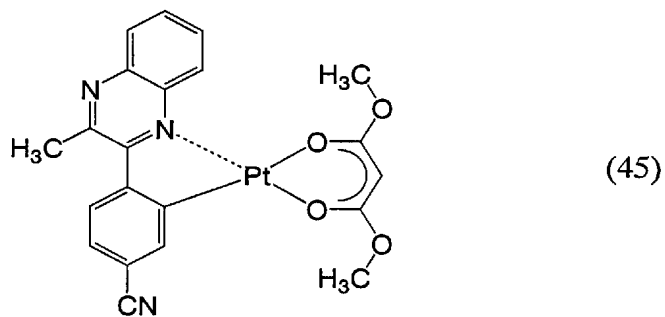


【 0 0 7 4】

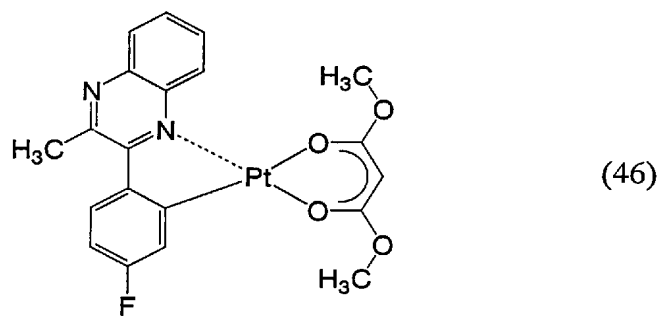
【化 3 8】



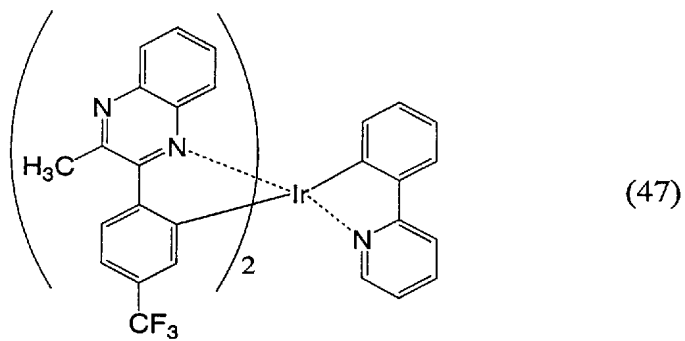
【 0 0 7 5 】  
【化 3 9】



【 0 0 7 6 】  
【化 4 0】

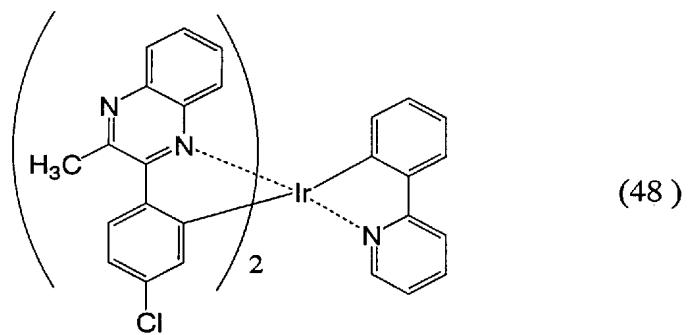


【 0 0 7 7 】  
【化 4 1】



【 0 0 7 8 】

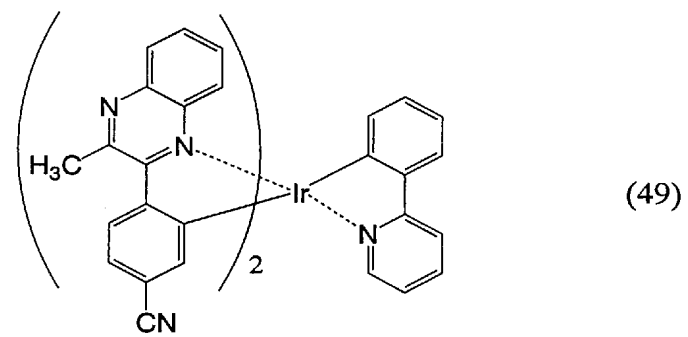
【化 4 2】



(48)

【 0 0 7 9 】

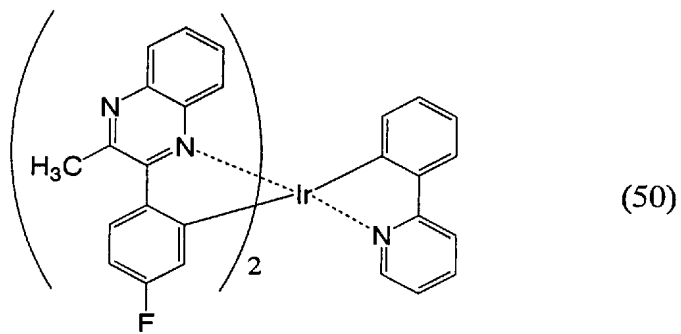
【化 4 3】



(49)

【 0 0 8 0 】

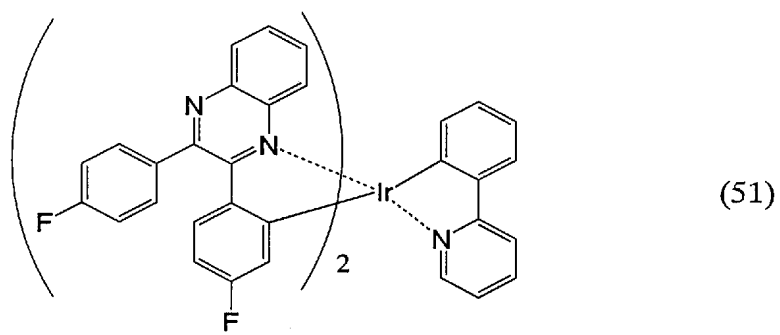
【化 4 4】



(50)

【 0 0 8 1 】

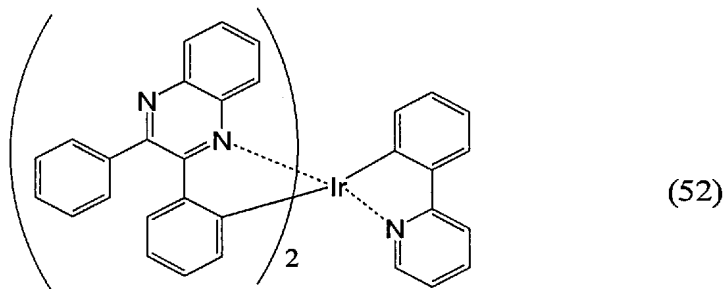
【化 4 5】



(51)

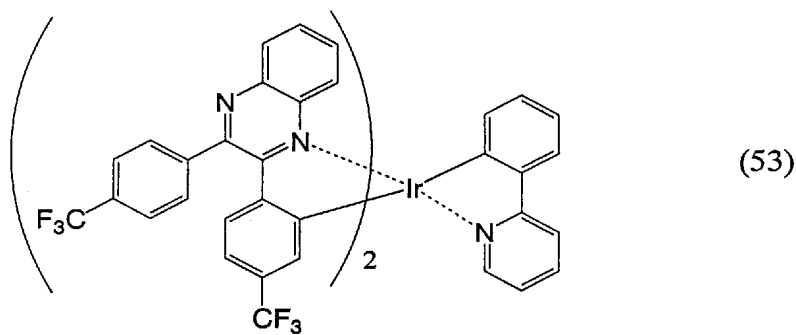
【 0 0 8 2 】

【 化 4 6 】



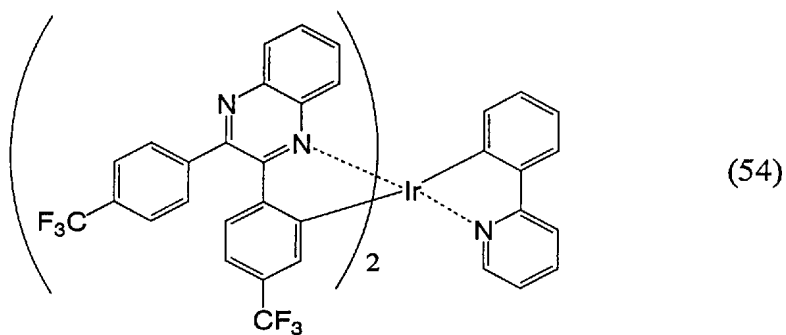
【 0 0 8 3 】

【 化 4 7 】



【 0 0 8 4 】

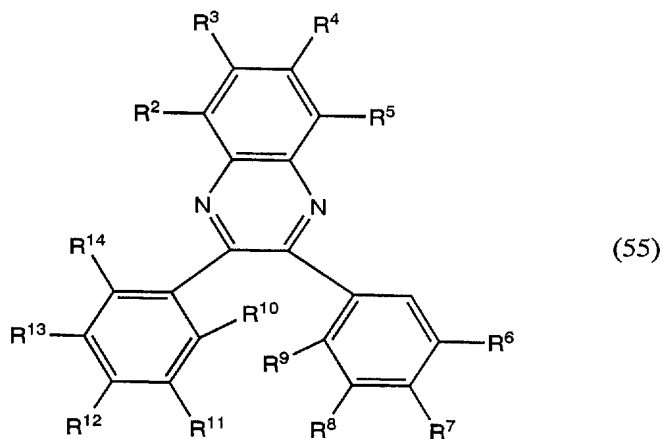
【 化 4 8 】



【 0 0 8 5 】

次に、本発明で用いる有機金属錯体の製造方法について説明する。本発明で用いる有機金属錯体、すなわち前記一般式（１）～（８）で表される有機金属錯体は、配位子をオルトメタル化させることによって得ることができる。例えば、下記一般式（５５）で表される配位子を有する有機金属錯体、すなわち前記一般式（３）や（７）で表される有機金属錯体は、下記一般式（５５）で表される配位子をオルトメタル化反応させることにより得られる。以下では、この一般式（５５）で表される配位子を用い、前記一般式（７）で表される有機金属錯体を合成する手法を説明する。

【 0 0 8 6 】



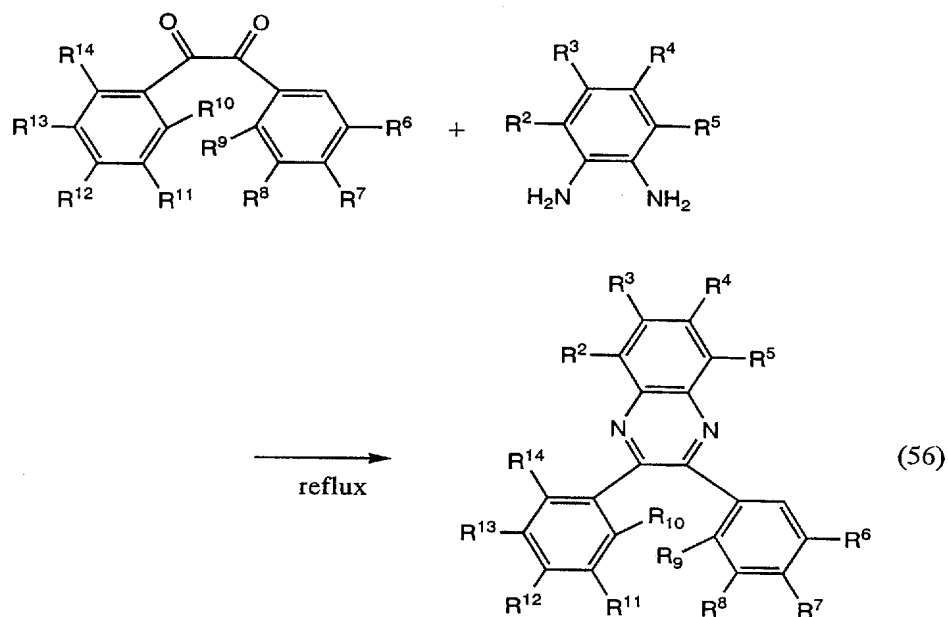
(式中、 $R^2 \sim R^{14}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。)

## 【0087】

なお、上記一般式(55)で表される配位子は、例えば、下記合成スキーム(56)で合成することができる。また、本発明で用いる有機金属錯体における他の配位子についても同様の手法で合成できる。

## 【0088】

## 【化 5 0】



(式中、 $R^2 \sim R^{14}$  は、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。)

## 【0089】

このようにして得られた一般式(55)の配位子を用いて、本発明で用いる有機金属錯体を合成する。この時の反応(オルトメタル化反応)としては、以下のような合成方法を用いればよい。

## 【0090】

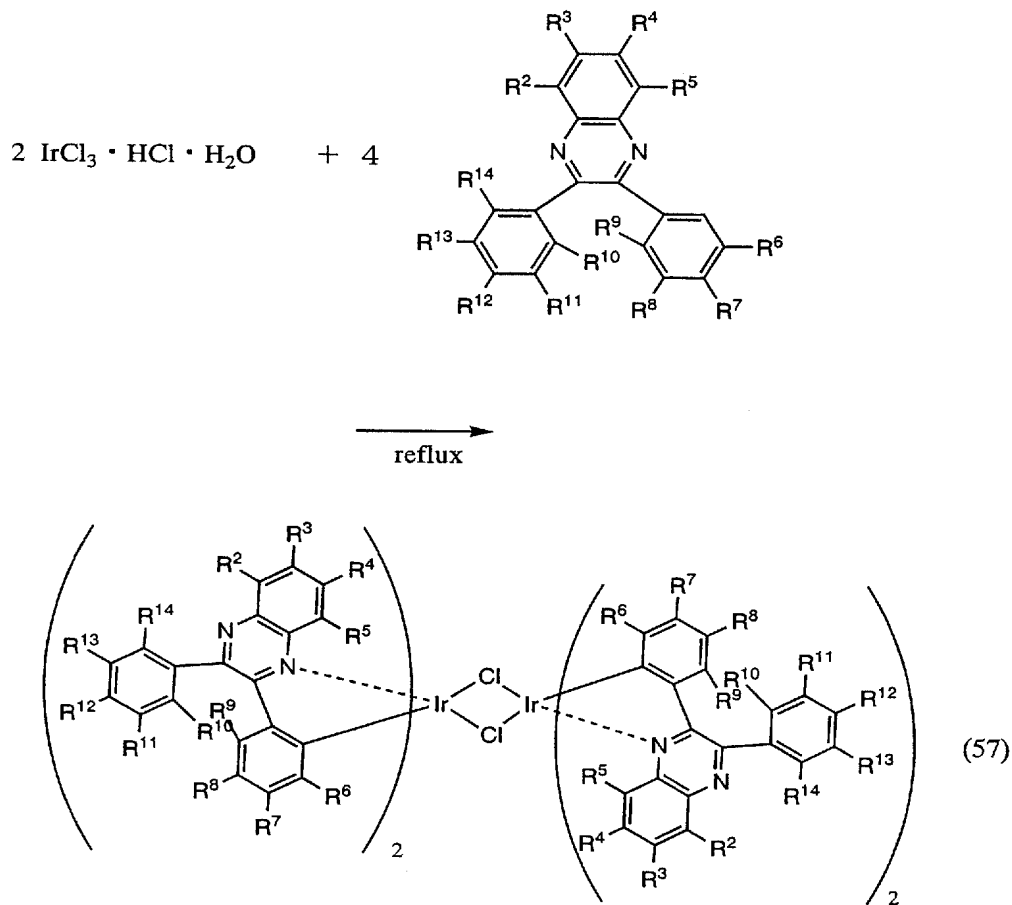
例えば、イリジウムを中心金属として本発明で用いる有機金属錯体を合成する際は、中



心金属原料として塩化イリジウムの水和物を用い、前記一般式（５５）の配位子と混合して窒素雰囲気下にて環流することにより、まず塩素架橋の複核錯体を合成する（下記合成スキーム（５７））。次に、得られた前記複核錯体と配位子Ｌとを混合して窒素雰囲気下にて環流することにより、塩素架橋を配位子Ｌで切断し、本発明で用いる有機金属錯体を得る（下記合成スキーム（５８））。なお、下記合成スキーム（５８）では、配位子として、アセチルアセトンを用いる。

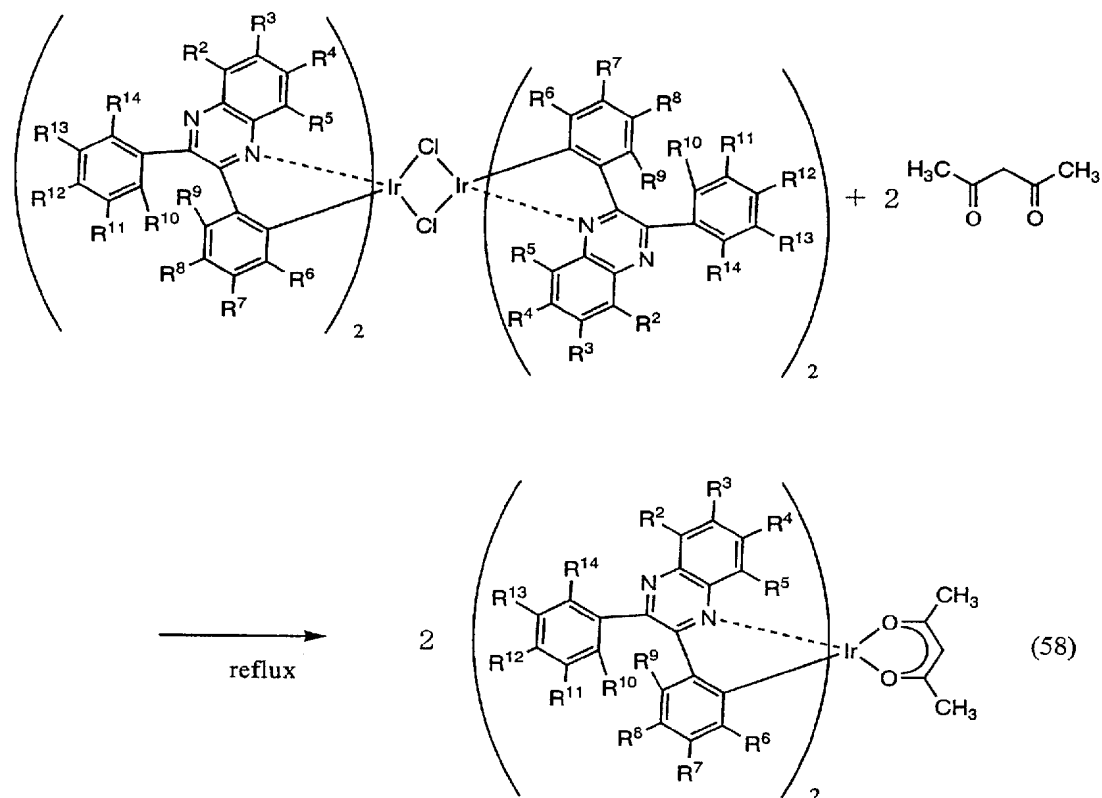
【００９１】

【化５１】



（式中、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^{14}$  は、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。）

【００９２】



(式中、 $R^2 \sim R^{14}$  は、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。)

#### 【0093】

なお、本発明で用いる有機金属錯体の合成方法は、上記に示す合成方法に限定されるものではない。

#### 【0094】

次に、本発明の発光素子について図面に沿って説明する。

#### 【0095】

##### 〈実施の形態1〉

本実施の形態1では、本発明の発光素子について図1を用いて説明する。

図1のとおり、基板100上に第1の電極101が形成され、第1の電極101上に発光物質を含む層102が形成され、その上に第2の電極103が形成された構造を有する。なお、ここで基板100に用いる材料としては、従来の発光素子に用いられているものであればよく、例えば、ガラス、石英、透明プラスチック、可撓性基板などからなるものを用いることができる。また、本実施例の形態1における第1の電極101は陽極として機能し、第2の電極103は陰極として機能する。

#### 【0096】

すなわち、第1の電極101は陽極材料で形成され、ここで用いることのできる陽極材料としては、仕事関数の大きい(仕事関数4.0 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。なお、陽極材料の具体例としては、ITO(indium tin oxide)、ITSO(indium tin silicon oxide)、酸化インジウムに2~20〔%〕の酸化亜鉛(ZnO)を混合したIZO(indium zinc oxide)の他、金(Au)、白金(Pt)、ニッケル(Ni)、タングステン(W)、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、銅(Cu)、パラジウム(Pd)、または金属材料の窒化物(TiN)等を用いることができる。

#### 【0097】

一方、第2の電極103の形成に用いられる陰極材料としては、仕事関数の小さい（仕事関数3.8 eV以下）金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。なお、陰極材料の具体例としては、元素周期律の1族または2族に属する元素、すなわちLiやCs等のアルカリ金属、およびMg、Ca、Sr等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金（Mg：Ag、Al：Li）や化合物（LiF、CsF、CaF<sub>2</sub>）の他、希土類金属を含む遷移金属を用いて形成することができるが、Al、Ag、ITO等の金属（合金を含む）との積層により形成することもできる。

#### 【0098】

なお、上述した陽極材料および陰極材料は、蒸着法、スパッタリング法等により薄膜を形成することにより、それぞれ第1の電極101および第2の電極103を形成する。膜厚は、10～500 nmとするのが好ましい。最後にSiN等の無機材料やテフロン（登録商標）、スチレンポリマー等の有機材料からなる保護層（バリア層）を形成する。バリア層は、透明であっても不透明であってもよく、上記無機材料または有機材料は、蒸着法、スパッタリング法等により形成する。

#### 【0099】

また、本発明の発光素子において、発光層におけるキャリアの再結合により生じる光は、第1の電極101または第2の電極103の一方、または両方から外部に出射される構成となる。すなわち、第1の電極101から光を出射させる場合には、第1の電極101を透光性の材料で形成することとし、第2の電極103側から光を出射させる場合には、第2の電極103を透光性の材料で形成することとする。また、発光物質を含む層102は複数の層を積層することにより形成されるが、本実施の形態1では、ホール注入層111、ホール輸送層112、発光層113、ホールブロッキング層114、および電子輸送層115を順に積層して形成される。

#### 【0100】

発光物質を含む層102において、ホール注入層111は、第1の電極101と接して設けられる。また、ホール注入層111は、第1の電極101からホールを受け取ることができる材料を用いて形成することが好ましい。さらに、ホール注入層111と接し、ホール注入層111よりも第2の電極103側に設けられている層へホールを注入できる材料を用いて形成することが好ましい。具体的には、フタロシアニン系の化合物を用いて形成することが好ましい。フタロシアニン系の化合物としては、例えば、フタロシアニン（略称：H<sub>2</sub>-Pcと示す）、銅フタロシアニン（略称：Cu-Pcと示す）などが挙げられる。

#### 【0101】

また、4,4'-ビス〔N-（4-（N,N-ジメチルアミノ）フェニル）-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：DNTPDと示す）や4,4',4''-トリス〔N-（3-メチルフェニル）-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン（略称：MTDA TAと示す）等の芳香族アミン系の化合物を用いることもできる。また、モリブデン酸化物（MoO<sub>x</sub>）やバナジウム酸化物（VO<sub>x</sub>）等の導電性無機化合物（半導体を含む）を用いることができる。さらに、それら導電性無機化合物と上記または下記に示すような芳香族アミン系の化合物との混合物を用いることができる。この混合物は共蒸着等の手法により形成することができる。

#### 【0102】

ホール輸送層112は、ホールを輸送することのできる材料を用いて形成することが好ましい。具体的には、芳香族アミン系（すなわち、ベンゼン環-窒素の結合を有するもの）の化合物を用いて形成することが好ましく、例えば、4,4'-ビス〔N-（3-メチルフェニル）-N-フェニルアミノ〕-ビフェニル（略称：TPDと示す）、4,4'-ビス〔N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ〕-ビフェニル（略称：α-NPDと示す）の他、上述したMTDA TAや4,4',4''-トリス（N,N-ジフェニルアミノ）-トリフェニルアミン（略称：TDATAと示す）などのスターバースト型芳

香族アミン化合物を用いて形成することが好ましい。また、モリブデン酸化物 ( $\text{MoO}_x$ ) やバナジウム酸化物 ( $\text{VO}_x$ ) 等の導電性無機化合物 (半導体を含む) と、上記のような芳香族アミン系の化合物との混合物を用いることができる。この混合物は共蒸着などの手法により形成することができる。

#### 【0103】

発光層 113 は、前記一般式 (1) ~ (4) で表される部分構造を有する有機金属錯体および前記一般式 (5) ~ (8) で表される有機金属錯体の中の少なくとも一つの有機金属錯体と、ホスト材料とを共蒸着することにより形成することが好ましい。ホスト材料としては、前記一般式 (1) ~ (4) で表される部分構造を有する有機金属錯体および前記一般式 (5) ~ (8) で表される有機金属錯体の中から選ばれる少なくとも一つの有機金属錯体よりも、エネルギーギャップ (Eg) が大きい物質を用いることが好ましい。

#### 【0104】

また、特に、ホスト材料としては、エネルギーギャップが大きく、さらに、前記一般式 (1) ~ (4) で表される部分構造を有する有機金属錯体および前記一般式 (5) ~ (8) で表される有機金属錯体の中から選ばれる少なくとも一つの有機金属錯体よりも、イオン化ポテンシャル (Ip) が大きく、且つ電子親和力 (EA) が小さい物質を用いることが好ましい。その例としては、4, 4-ビス (N-カルbazol) ピフェニル (略称: CBP)、4, 4', 4''-トリリス (N-カルbazol) トリフェニルアミン (略称: TCTA)、1, 3, 5-トリリス [4-(N-カルbazol) フェニル] ベンゼン (略称: TCPB) などが挙げられる。また、ホスト材料は、ホールまたは電子のいずれか一つまたは両方のキャリアを輸送することのできる物質、具体的には、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上のキャリア移動度を有する物質からなることが、より好ましい。これにより、駆動電圧を低減でき、また素子の信頼性を向上させることができる。

#### 【0105】

ホスト材料として用いることのできる物質の具体例としては、 $\alpha$ -NP D やトリリス (8-キノリノラト) アルミニウム (略称: Alq<sub>3</sub>) が挙げられる。なお、 $\alpha$ -NP D におけるホールの移動度は  $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  程度であり、トリリス (8-キノリノラト) アルミニウム (略称: Alq<sub>3</sub>) における電子の移動度は  $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  程度である。このように、ホールまたは電子のいずれか一つまたは両方のキャリアの移動度は  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上であることが好ましい。但し、ホスト材料は  $\alpha$ -NP D や Alq<sub>3</sub> に限定されるものではなく、上述した TP D 等の芳香族アミン化合物や、トリリス (8-キノリノラト) ガリウム (略称: Gaq<sub>3</sub>)、トリリス (4-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム (略称: Almq<sub>3</sub>) 等の金属錯体等もホスト材料として用いることができる。これら Alq<sub>3</sub>、Gaq<sub>3</sub>、Almq<sub>3</sub> は電子輸送性の金属錯体の具体例に相当している。

#### 【0106】

発光層 113 を以上のような構成とすることで、発光層 113 中においてホールや電子が容易に輸送されるのみならず、それらホールや電子は発光層を通過することなく前記の有機金属錯体に効率的にトラップされ、発光に至る。従って、発光層中をホールや電子が通り抜け難く、また励起子生成が効率的になり、発光効率の低下 (すなわち輝度の劣化) が少ない安定なデバイスを構築することができる。

#### 【0107】

前掲構造式 (16) ~ (54) で表される有機金属錯体は、有機-金属結合によってホールを受け取りやすくなっていることに加え、キノキサリン骨格によって電子をも受け取りやすくなっているため、効果的にキャリアをトラップできるという利点がある。

#### 【0108】

なお、構造式 (16) ~ (54) で表される有機金属錯体の中でも、特に (16) や (18) のように、フルオロ基やトリフルオロメチル基を有する有機金属錯体を用いて発光層 113 を形成することが好ましい。これによって、ホスト材料の選択性が広がる。また特に、電子に対する親和性が高くなり、さらに効果的に電子をトラップすることができるという利点がある。

### 【0109】

ホールブロッキング層114は、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-4-フェニルフェノラト-アルミニウム(略称:BA1qと示す)、1,3-ビス(5-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル)ベンゼン(略称:OXD-7と示す)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4-ビフェニリル)-1,2,4-トリアゾール(略称:TAZと示す)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ビフェニリル)-1,2,4-トリアゾール(略称:p-EtTAZと示す)、バソフェナントロリン(略称:BPHenと示す)、バソキュープロイン(略称:BCPと示す)等のイオン化ポテンシャルの大きい材料を用いて形成することが好ましく、発光層113のイオン化ポテンシャルよりも0.3eV以上大きい材料を用いて形成することが、より好ましい。これによって、第1の電極101側から発光物質を含む層に注入されたホールが陰極として機能する電極側へ流れていくのを阻止できる。また、光のエネルギーが電子輸送層の方にエネルギー移動してしまうのを防ぐことができる。

### 【0110】

電子輸送層115は、陰極として機能する電極側から発光物質を含む層に注入された電子を発光層の方へ輸送できる材料を用いて形成することが好ましい。また、発光層を形成している材料よりもイオン化ポテンシャルが大きい材料を用いて形成することが好ましいが、本形態のようにホールブロッキング層を設ける場合は、必ずしも発光層を形成している材料よりもイオン化ポテンシャルが大きい材料を用いなくてもよい。

### 【0111】

このような材料の具体例としては、Alq<sub>3</sub>、Ga q<sub>3</sub>、Almq<sub>3</sub>、ビス(10-ヒドロキシベンゾ(h)-キノリナト)ベリリウム(略称:BeBq<sub>2</sub>と示す)などのキノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体や、前述のBA1qが挙げられる。このほか、ビス(2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾオキサゾラト)亜鉛(略称:Zn(BOX)<sub>2</sub>と示す)、ビス(2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾチアゾラト)亜鉛(略称:Zn(BTZ)<sub>2</sub>と示す)などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体等も電子輸送層115を形成する材料として用いることができる。また、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(略称:PB Dと示す)や、前述のOXD-7、TAZ、p-EtTAZ、BPHen、BCPの他、チタン酸化物等の無機物を用いてもよい。

### 【0112】

以上に説明した本発明の発光素子は、発光時間の経過に伴った発光輝度の減少が少なく、良好な素子寿命を示すものである。

### 【0113】

#### 〈実施の形態2〉

本発明の発光素子について図2を用いて説明する。

図2に示す発光素子は、基板200上に陰極として機能する第1の電極201を有し、第1の電極201上に発光物質を含む層202を有し、発光物質を含む層202上に陽極として機能する第2の電極203を有する。発光物質を含む層202は、図2に示すように、電子輸送層211、ホールブロッキング層212、発光層213、ホール輸送層214およびホール注入層215とが順に積層してなり、発光層216を中心として第1の電極201側に電子輸送層211が、第2の電極203側にホール注入層214がそれぞれ設けられている。

### 【0114】

電子輸送層211、ホールブロッキング層212、発光層213、ホール輸送層214およびホール注入層215とは、それぞれ実施の形態1で説明した電子輸送層、ホールブロッキング層、発光層、ホール輸送層およびホール注入層と同様の材料を用い、蒸着法等を用いて形成すればよい。このように、陰極として機能する電極が基板側に設けられているような発光素子であってもよい。なお、本発明の発光素子において、発光物質を含む

層 2 0 2 におけるキャリアの再結合により生じる光は、第 1 の電極 2 0 1 または第 2 の電極 2 0 3 の一方、または両方から外部に出射される。

#### 【0 1 1 5】

以上に説明した本発明の発光素子は、発光時間の経過に伴った発光輝度の減少が少なく、良好な素子寿命を示すものである。

#### 【0 1 1 6】

##### 〈実施の形態 3〉

本実施の形態 3 においては、ガラス、石英、金属、バルク半導体、透明プラスチック、可撓性基板などからなる基板 3 0 0 上に発光素子を作製している。一基板上にこのような発光素子を複数作製することで、パッシブ型の発光装置を作製することができる。また、ガラス、石英、透明プラスチック、可撓性基板などからなる基板以外に、例えば図 3 に示すように、薄膜トランジスタ (T F T) アレイと接する発光素子を作製してもよい。ここでは、3 1 1 と 3 1 2 を T F T とし、本発明の発光素子 3 1 3 を作製する。

#### 【0 1 1 7】

発光素子 3 1 3 のうち、第 1 の電極 3 1 4、発光物質を含む層を 3 1 5 と、また第 2 の電極 3 1 6 を作製することができる。さらに配線 3 1 7 を第 2 の電極 3 1 6 に接して作製する。これにより、T F T によって発光素子の駆動を制御するアクティブマトリクス型の発光装置を作製できる。なお、T F T の構造は、特に限定されない。例えば、スタガ型でもよいし、逆スタガ型でもよい。また、T F T を構成している半導体層の結晶性についても特に限定されず、結晶質のものでもよいし非晶質のものでもよい。

#### 【実施例】

#### 【0 1 1 8】

以下、実施例に基づき本発明をさらに詳しく説明するが、本発明がこれら実施例に限定されないことはもちろんである。まず、有機金属錯体の合成例を記載し、次いで本発明の発光素子の素子構造、その作製方法および発光装置の実施例を記載している。

#### 【0 1 1 9】

##### 《合成例 1》

本合成例は、前構造式 (1 6) で表されるビス { 2 , 3 -ビス ( 4 -フルオロフェニル ) キノキサリナト } アセチルアセトネート イリジウム ( I I I ) [ 略称 : I r ( F d p q ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] の合成例である。

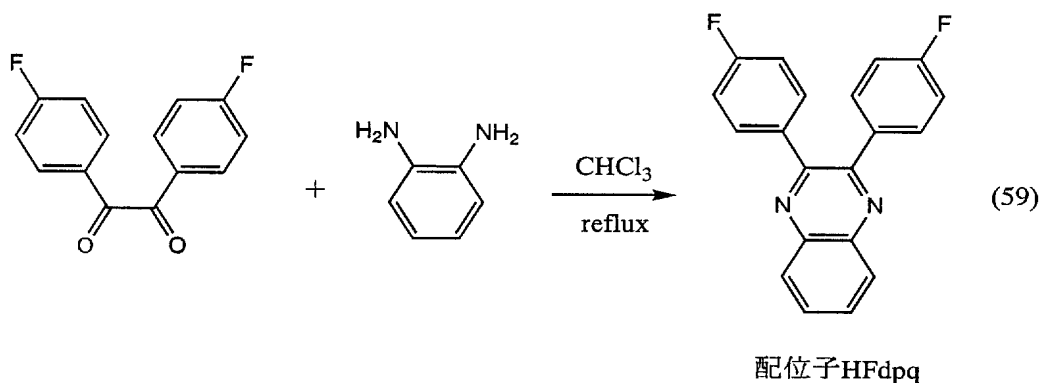
#### 【0 1 2 0】

##### 〈ステップ 1 : 配位子 ( H F d p q ) の合成〉

まず、4 , 4 ' -ジフルオロベンジル 3 . 7 1 g と o -フェニレンジアミン 1 . 7 1 g を溶媒クロロホルム 2 0 0 m L 中で 6 時間、加熱攪拌した。反応溶液を室温に戻し、1 N H C l と飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去することにより、配位子 H F d p q [ 2 , 3 -ビス ( 4 -フルオロフェニル ) キノキサリン ] を得た ( 淡黄色粉末、収率 9 9 % ) 。合成スキームおよび配位子 H F d p q の構造式を下記式 ( 5 9 ) に示す。

#### 【0 1 2 1】

【化53】



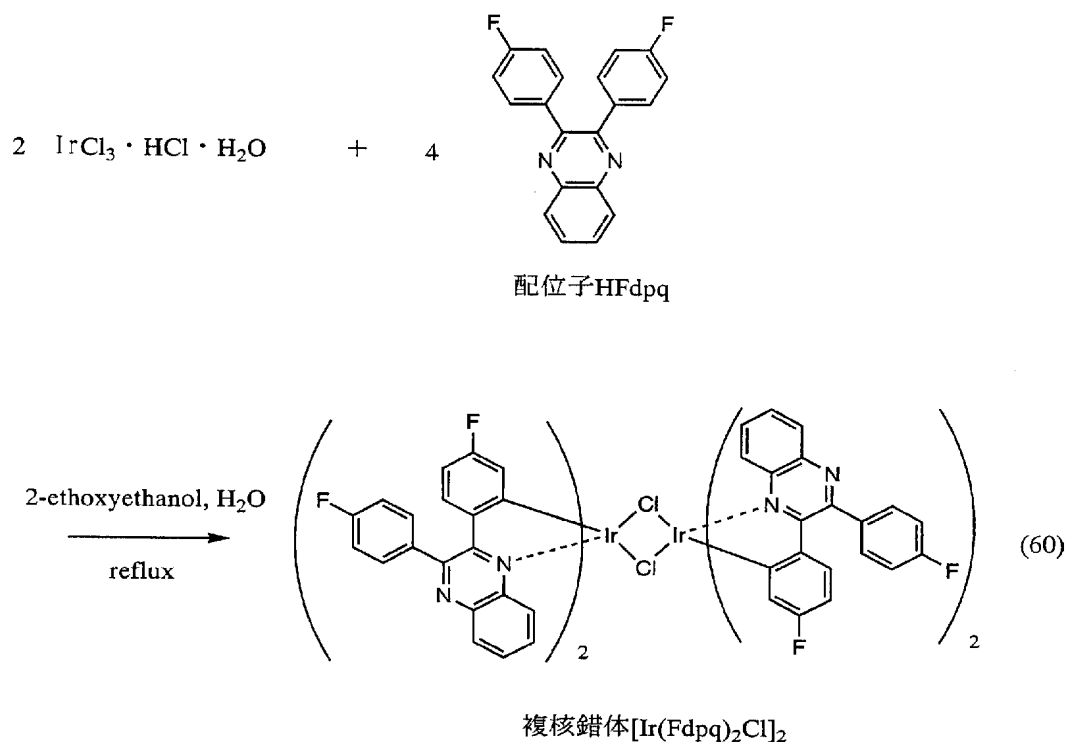
【0122】

〈ステップ2：複核錯体 $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$ の合成〉

まず、2-エトキシエタノール30mlと水10mlとの混合液を溶媒として、配位子HFdpq（2，3-ビス（4-フルオロフェニル）キノキサリン）を3.61g、塩化イリジウム（ $\text{IrCl}_3 \cdot \text{HCl} \cdot \text{H}_2\text{O}$ ）を1.35g混合し、窒素雰囲気下17時間還流することにより、複核錯体 $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$ を得た（褐色粉末、収率99%）。合成スキームおよび複核錯体 $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$ の構造式を下記式（60）に示す。

【0123】

【化54】



【0124】

〈ステップ3：本発明の発光素子で用いる有機金属錯体 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$ の合成〉

さらに、2-エトキシエタノール30mlを溶媒として、上記ステップ2で得られた複核錯体 $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$ を2.00g、アセチルアセトン（Hacac）を

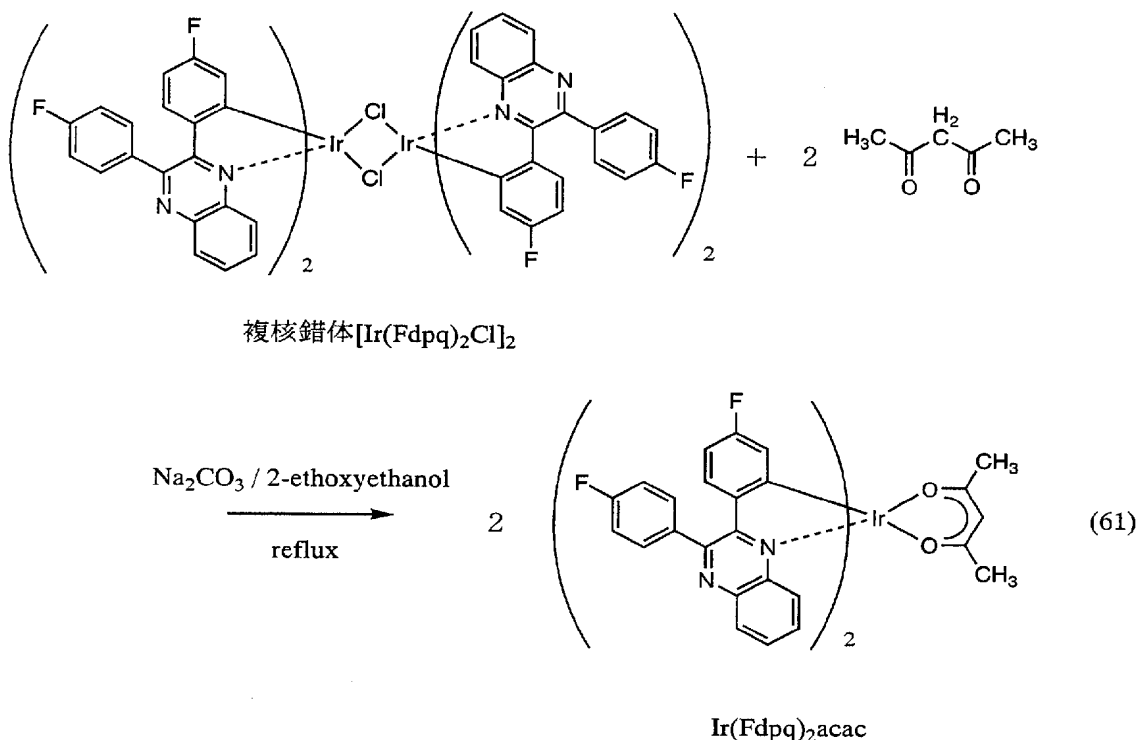
0.44 ml、炭酸ナトリウムを1.23 g 混合し、窒素雰囲気下にて20時間還流することにより、前記構造式(16)で表される本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  を得た(赤色粉末、収率44%)。合成スキームを下記式(61)に示す。本有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  の核磁気共鳴分光法( $^1\text{H-NMR}$ )による分析結果は下記のとおりである。

【0125】

$^1\text{H-NMR}$ .  $\delta$  ( $\text{CDCl}_3$ ): 8.20 (d, 2H), 8.11 (d, 2H), 8.01 (brs, 4H), 7.68 (t, 2H), 7.52 (t, 2H), 7.32 (brm, 4H), 7.08 (m, 2H), 6.39 (td, 2H), 6.05 (dd, 2H), 4.71 (s, 1H), 1.62 (s, 6H)

【0126】

【化55】



【0127】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  の分解温度  $T_d$  を示唆熱重量同時測定装置(セイコー電子株式会社製, TG/DTA 320型)により測定したところ、 $T_d = 365^\circ\text{C}$  であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

【0128】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  のジクロロメタン中における吸収スペクトルおよび発光スペクトル(Photo Luminescence)を図4に示す。なお、発光スペクトルは、ハロゲンランプの光をスリットによって分光して取り出した469 nmの波長の光を励起光として用いたときに得られたものである。図4において、横軸は波長(nm)を表し、左縦軸は吸光度(単位無し)を表し、右縦軸は発光強度〔任意単位(a.u.)〕を表す。図4からも分かるように、本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  は232 nm、284 nm、371 nmおよび472 nmに吸収ピークを有している。また、発光スペクトルは644 nmに発光ピークを有する発光であった。そしてこの発光は、赤色と視認された。

【0129】

なお、得られた  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  は長波長側にいくつかの吸収ピークが



観測される。これは、オルトメタル錯体等によく見られる有機金属錯体特有の吸収であり、一重項MLCT遷移、三重項 $\pi-\pi^*$ 遷移、三重項MLCT (Metal to ligand charge transfer) 遷移などに対応すると類推される。特に、最も長波長側の吸収ピークが可視領域においてブロードな裾を引いており、三重項MLCT遷移特有の吸収スペクトルであると考えられる。すなわち、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$ は三重項励起状態への直接光励起や項間交差が可能な化合物であることが分かった。

#### 【0130】

また、得られた $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$ を含むジクロロメタン溶液に酸素を含む気体を注入し、酸素を溶存させた状態で $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$ を発光させたときの発光強度を調べた。また、得られた $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$ を含むジクロロメタン溶液にアルゴンを注入し、アルゴンを溶存させた状態で $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$ を発光させたときの発光強度を調べた。その結果、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$ 由来の発光は酸素を溶存させた状態における発光強度よりもアルゴンを溶存させた状態における発光強度の方が強いという、燐光を発光する物質と同様の傾向を示すことが分かった。このことから、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$ 由来の発光は燐光であると考えられる。

#### 【0131】

##### 《合成例2》

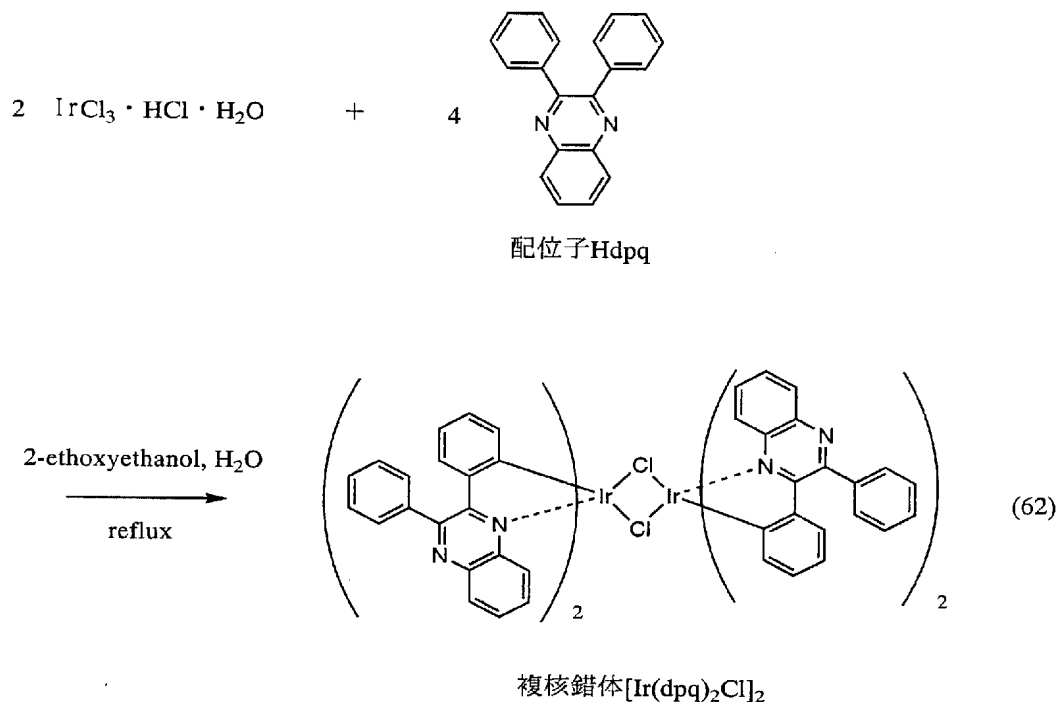
本合成例は、前記構造式(17)で表されるビス(2,3-ジフェニルキノキサリナト)アセチルアセトネートイリジウム(III)〔略称： $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$ 〕の合成例である。

#### 【0132】

〈ステップ1：複核錯体 $[\text{Ir}(\text{dpq})_2\text{Cl}]_2$ の合成〉

まず、2-エトキシエタノール30mlと水10mlとの混合液を溶媒として、配位子Hdpq(2,3-ジフェニルキノキサリン)の2.36gと、塩化イリジウム( $\text{IrCl}_3 \cdot \text{HCl} \cdot \text{H}_2\text{O}$ )の1.00gを混合し、窒素雰囲気下15時間還流することにより、複核錯体 $[\text{Ir}(\text{dpq})_2\text{Cl}]_2$ を得た(暗い褐色粉末、収率91%)。合成スキームおよび複核錯体 $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$ の構造式を下記式(62)に示す。

#### 【0133】



## 【0134】

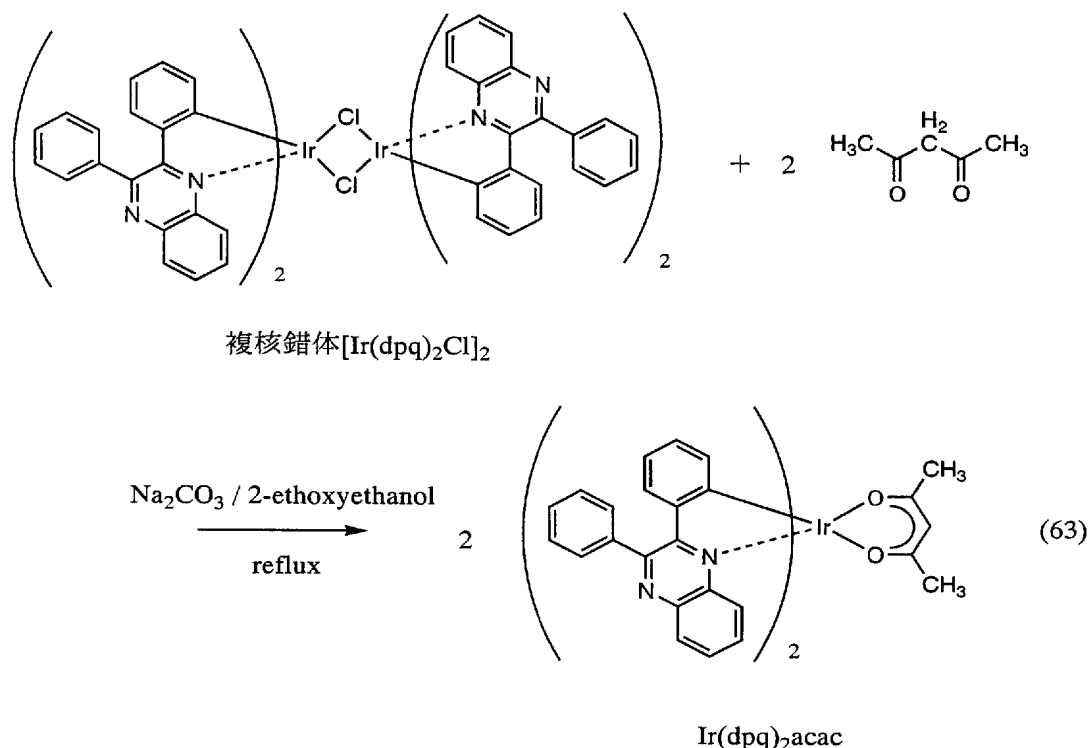
〈ステップ2：本発明の有機金属錯体 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$ の合成〉

さらに、2-エトキシエタノール30mlを溶媒として、上記ステップ1で得られた $[\text{Ir}(\text{dpq})_2\text{Cl}]_2$ を1.00g、アセチルアセトン(Hacac)を0.20ml、炭酸ナトリウムを0.67g混合し、窒素雰囲気下にて15時間還流した。これを濾過して得られた溶液を、ジクロロメタン溶媒にてカラム精製した。ジクロロメタン／メタノール溶媒より再結晶を行い、本発明で用いる有機金属錯体 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$ を得た(赤褐色粉末、収率40%)。合成スキームを下記式(63)に示す。本有機金属錯体 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$ の核磁気共鳴分光法( $^1\text{H-NMR}$ )による分析結果は下記の通りである。

## 【0135】

$^1\text{H-NMR}$ .  $\delta$  ( $\text{CDCl}_3$ ) : 8.15 (t, 4H), 7.89 (brs, 4H), 7.79 (t, 2H), 7.69 (m, 8H), 6.94 (d, 2H), 6.57 (t, 2H), 6.48 (t, 2H), 6.33 (d, 2H), 4.81 (s, 1H), 1.64 (s, 6H)

## 【0136】



## 【0137】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  の分解温度  $T_d$  を示唆熱重量同時測定装置（セイコー電子株式会社製，TG/DTA 320 型）により測定したところ、 $T_d = 340^\circ\text{C}$  であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

## 【0138】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  のジクロロメタン中における吸収スペクトルおよび発光スペクトル（PL）を図5に示す。なお、発光スペクトルは、ハロゲンランプの光をスリットによって分光して取り出した  $469\text{ nm}$  の波長の光を励起光として用いたときに得られたものである。図5において、横軸は波長（ $\text{nm}$ ）を表し、左縦軸は吸光度（単位無し）を表し、右縦軸は発光強度（任意単位）を表す。図5からも分かるように、得られた有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  は  $248\text{ nm}$ 、 $283\text{ nm}$ 、 $378\text{ nm}$  および  $479\text{ nm}$  に吸収ピークを有している。また、発光スペクトルは  $687\text{ nm}$  に発光ピークを有する発光であった。そしてこの発光は、深い赤色と視認された。

## 【0139】

なお、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  は、長波長側にいくつかの吸収ピークが観測される。これは、オルトメタル錯体等によく見られる有機金属錯体特有の吸収であり、一重項  $\text{MLCT}$  遷移、三重項  $\pi-\pi^*$  遷移、三重項  $\text{MLCT}$  遷移などに対応すると類推される。特に、最も長波長側の吸収ピークが可視領域においてブロードな裾を引いており、三重項  $\text{MLCT}$  遷移特有の吸収スペクトルであると考えられる。すなわち、 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  は三重項励起状態への直接光励起や項間交差が可能な化合物であることが分かった。

## 【0140】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  を含むジクロロメタン溶液に酸素を含む気体を注入し、酸素を溶存させた状態で  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  を発光させたときの発光強度を調べた。また、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  を含むジクロロメタン溶液にアルゴンを注入し、アルゴンを溶存させた状態で  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$

を発光させたときの発光強度を調べた。その結果、 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  由来の発光は酸素を溶存させた状態における発光強度よりもアルゴンを溶存させた状態における発光強度の方が強いという、燐光を発光する物質と同様の傾向を示すことが分かった。このことから、 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  由来の発光は燐光であると考えられる。

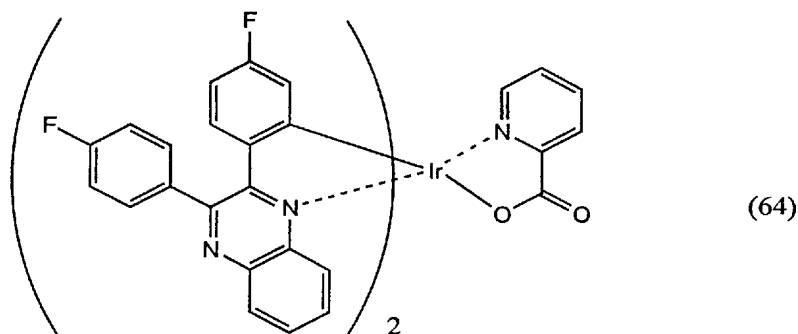
【0141】

《合成例3》

本合成例は、前記一般式(1)～(8)に含まれるビス{2,3-ビス(4-フルオロフェニル)キノキサリナト}ピコリネート イリジウム(III)〔略称： $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{pic})$ 〕の合成例である。 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{pic})$ の構造式を下記式(64)に示す。

【0142】

【化58】



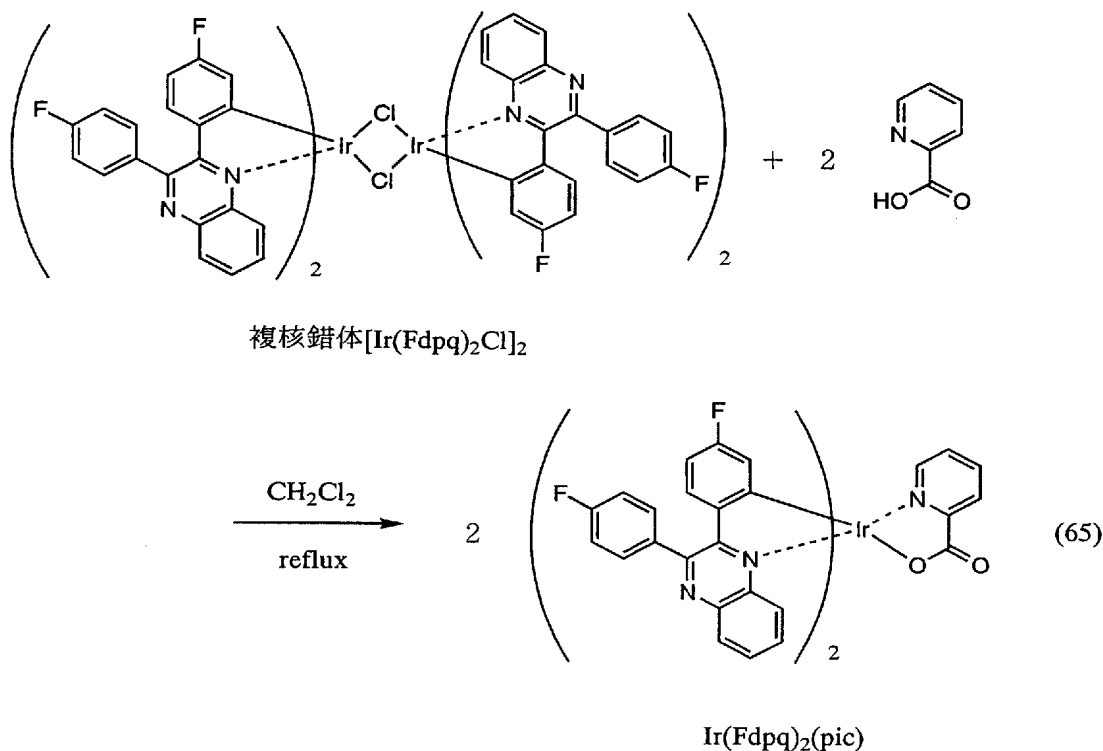
【0143】

まず、原料としては、合成例1のステップ2で得られた複核錯体 $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$ を用いた。ジクロロメタン30mlを溶媒として、 $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$ を2.87g、ピコリン酸( $\text{Hp ic}$ )を1.67g混合し、窒素雰囲気下にて16時間還流した。これを濾過して、本発明の有機金属錯体 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{pic})$ を得た(赤色粉末、収率56%)。合成スキームを下記式(65)に示す。本有機金属錯体 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{pic})$ の核磁気共鳴分光法( $^1\text{H}$ -NMR)による分析結果は下記の通りである。

【0144】

$^1\text{H}$ -NMR.  $\delta$  ( $\text{CDCl}_3$ ): 8.66 (d, 1H), 8.45 (d, 1H), 8.04 (m, 4H), 7.95 (d, 1H), 7.81 (m, 3H), 7.69 (m, 2H), 7.59 (t, 1H), 7.53 (t, 1H), 7.33 (m, 5H), 7.18 (t, 1H), 7.07 (t, 2H), 6.51 (td, 1H), 6.38 (m, 2H), 5.78 (dd, 1H)

【0145】



## 【0146】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{pic})$  の分解温度  $T_d$  を示唆熱重量同時測定装置（セイコー電子株式会社製，TG/DTA 320 型）により測定したところ、 $T_d = 347^\circ\text{C}$  であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

## 【0147】

## 《実施例 1》

本実施例では、本発明の発光素子の素子構造および作製方法について図 6 を用いて説明する。

## 【0148】

まず、基板 400 上に、110 nm の膜厚となるようにインジウム錫酸化物を成膜し、第 1 の電極 401 を形成した。なお、成膜にはスパッタ法を用いた。

## 【0149】

次に、第 1 の電極 401 上に、膜厚 20 nm となるように銅フタロシアニン成膜し、ホール注入層 411 を形成した。なお、成膜は、第 1 の電極 401 が形成された基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに第 1 の電極 401 が形成された面を下方にして固定し、真空蒸着装置の内部に備えられた蒸発源に銅フタロシアニンを入れ、抵抗加熱法を用いた蒸着法によって行った。

## 【0150】

次に、ホール注入層 411 上に、膜厚 40 nm となるように  $\alpha$ -NPD を成膜し、ホール輸送層 412 を形成した。なお、成膜は、ホール注入層 411 の形成と同様に、蒸着法によって行った。

## 【0151】

次に、 $\alpha$ -NPD 中に 8 質量% の割合で前記構造式 (16) で表されるビス {2, 3-ビス (4-フルオロフェニル) キノキサリナト} アセチルアセトネート イリジウム (III) (以下、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  と記す。) が含まれるように  $\alpha$ -NPD を成膜し、発光層 413 を形成した。なお、成膜は、 $\alpha$ -NPD と  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$

a c) とをそれぞれ蒸発源として備えた共蒸着法を用いて行い、膜厚は30 nmになるようにした。ここで、 $\alpha$ -NP Dは、ホスト材料として機能する。

#### 【0152】

次に、発光層413上に、膜厚30 nmとなるようにAlq<sub>3</sub>を成膜し、電子輸送層414を形成した。なお、成膜は、ホール注入層411の形成と同様に、蒸着法によって行った。次に、電子輸送層414上に、膜厚1 nmとなるように弗化カルシウム(CaF<sub>2</sub>)を成膜し、電子注入層415を形成した。なお、成膜は、ホール注入層411の形成と同様に、蒸着法によって行った。

#### 【0153】

以上のようにして、ホール注入層411、ホール輸送層412、発光層413、電子輸送層414、電子注入層415を積層して形成される発光物質を含む層402を形成した。

#### 【0154】

次に、電子注入層415上に、膜厚150 nmとなるようにアルミニウムを成膜し、第2の電極403を形成した。なお、成膜は、ホール注入層411の形成と同様に、蒸着法によって行った。

#### 【0155】

また、作製した発光素子を窒素雰囲気下のグローブボックス内に移動し、同グローブボックスにてシール材を用いて封止を行った。発光素子を封止後グローブボックス外に取り出し、室温(約25℃)にて初期状態における電流密度-輝度特性、電圧-輝度特性、輝度-電流効率特性について調べた。また、定電流駆動による連続点灯試験を行い、素子寿命について調べた。

#### 【0156】

まず、作製した発光素子の初期特性を図7に示す。図6(a)は電流密度-輝度特性を、図7(b)は電圧-輝度特性を、図7(c)は輝度-電流効率特性を示している。電圧-輝度特性から、9.0 Vの電圧を印加した時に、440 cd/m<sup>2</sup>の輝度で発光し、その時の発光効率が1.0 cd/Aであることが分かった。なお、発光スペクトルのピーク波長は647 nmであった。また、CIE色度座標は(x, y) = (0.67, 0.32)であり、Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(acac)に由来する極めて色純度の高い赤色系の発光を示すことが分かった。

#### 【0157】

次に、一定時間、一定の電流値の電流を流す定電流駆動による連続点灯試験を行った。試験方法としては、初期状態において440 cd/m<sup>2</sup>の輝度で発光するために必要な電流密度(44.3 mA/cm<sup>2</sup>)の電流を一定時間流し続け、輝度の経時変化を調べた。その結果、3800時間経過時における輝度は、初期状態における輝度の68%を保持しており、輝度の半減には至らなかった。このことから、本発明の発光素子は、発光時間に伴う輝度の減少が小さく、素子寿命が良好であることが分かった。

#### 【0158】

##### 《実施例2》

本実施例では、Alq<sub>3</sub>をホスト材料として用いた本発明の発光素子の素子構造およびその作製方法について図8を用いて説明する。

#### 【0159】

まず、基板500上に、110 nmの膜厚となるようにインジウム錫酸化物を成膜し、第1の電極501を形成した。なお、成膜にはスパッタ法を用いた。

#### 【0160】

次に、第1の電極501上に、膜厚20 nmとなるようにDNTPDを成膜し、ホール注入層511を形成した。なお、成膜は、第1の電極501が形成された基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに第1の電極501が形成された面を下方にして固定し、真空蒸着装置の内部に備えられた蒸発源にDNTPDを入れ、抵抗加熱法を用いた蒸着法によって行った。

#### 【0161】

次に、ホール注入層511上に、膜厚10nmとなるように $\alpha$ -NPDを成膜し、ホール輸送層512を形成した。なお、成膜は、ホール注入層511の形成と同様に、蒸着法によって行った。

#### 【0162】

次に、Alq<sub>3</sub>中に8質量%の割合で前記構造式(16)で表されるビス{2,3-ビス(4-フルオロフェニル)キノキサリナト}アセチルアセトネートイリジウム(III)(以下、Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(acac)と記す。)が含まれるようにAlq<sub>3</sub>を成膜し、発光層513を形成した。なお、成膜は、Alq<sub>3</sub>とIr(Fdpq)<sub>2</sub>(acac)とをそれぞれ蒸発源として備えた共蒸着法を用いて行い、膜厚は30nmになるようにした。ここで、Alq<sub>3</sub>は、ホスト材料として機能する。

#### 【0163】

次に、発光層513上に、膜厚30nmとなるようにAlq<sub>3</sub>を成膜し、電子輸送層514を形成した。なお、成膜は、ホール注入層511の形成と同様に、蒸着法によって行った。

#### 【0164】

次に、電子輸送層514上に、膜厚1nmとなるように弗化カルシウム(CaF<sub>2</sub>)を成膜し、電子注入層515を形成した。なお、成膜は、ホール注入層511の形成と同様に、蒸着法によって行った。

#### 【0165】

以上のようにして、ホール注入層511、ホール輸送層512、発光層513、電子輸送層514、電子注入層515を積層して形成される発光物質を含む層502を形成した。

#### 【0166】

次に、電子注入層515上に、膜厚150nmとなるようにアルミニウムを成膜し、第2の電極503を形成した。なお、成膜は、ホール注入層511の形成と同様に、蒸着法によって行った。

#### 【0167】

また、作製した発光素子を窒素雰囲気下のグローブボックス内に移動し、同グローブボックスにてシール材を用いて封止を行った。発光素子を封止後グローブボックス外に取り出し、室温(約25℃)にて初期状態における電流密度-輝度特性、電圧-輝度特性、輝度-電流効率について調べた。また、定電流駆動による連続点灯試験を行い、素子寿命について調べた。

#### 【0168】

まず、作製した発光素子の初期特性を図9に示す。図9(a)が電流密度-輝度特性、図9(b)が電圧-輝度特性、図9(c)が輝度-電流効率を表す。電圧-輝度特性から、10.6Vの電圧を印加した時に、470cd/m<sup>2</sup>の輝度で発光し、その時の発光効率が1.1cd/Aであることが分かった。なお、発光スペクトルのピーク波長は659nmであった。また、CIE色度座標は(x, y)=(0.70, 0.30)であり、Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(acac)に由来する極めて色純度の高い赤色系の発光を示すことが分かった。

#### 【0169】

次に、定電流駆動による連続点灯試験を行った。試験方法としては、初期状態において470cd/m<sup>2</sup>の輝度で発光するために必要な電流密度(41.7mA/cm<sup>2</sup>)の電流を一定時間流し続け、輝度の経時変化を調べた。その結果、1400時間経過時における輝度は、初期状態における輝度の89%を保っており、輝度の半減には至らなかった。このことから、本発明の発光素子は、発光時間に伴う輝度の減少が小さく、素子寿命が良好であることが分かった。

#### 【0170】

《実施例3》

本実施例では、 $\alpha$ -NP DおよびAlq<sub>3</sub>の2種類の材料をホスト材料として用いた発光素子の例について説明する。本実施例の素子は、発光層513を下記のとおりの構成とした以外は、実施例2と同様にして作製した。

#### 【0171】

発光層513は、 $\alpha$ -NP Dの蒸着レートを0.4 nm/sに設定し、また、Alq<sub>3</sub>の蒸着レートを0.1 nm/sに設定した状態で、さらに前記構造式(16)で表されるIr(Fdpq)<sub>2</sub>(acac)を蒸発させる3元蒸着により形成した。この時、Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(acac)の添加量が $\alpha$ -NP Dに対して8質量%となるように設定した。また、膜厚は30 nmになるようにした。ここで、 $\alpha$ -NP DおよびAlq<sub>3</sub>は、ホスト材料として機能する。

#### 【0172】

また、作製した発光素子を窒素雰囲気下のグローブボックス内に移動し、同グローブボックスにてシール材を用いて封止を行った。発光素子を封止後、グローブボックス外に取り出し、室温(約25℃)にて初期状態における電流密度-輝度特性、電圧-輝度特性、輝度-電流効率特性について調べた。また、定電流駆動による連続点灯試験を行い、素子寿命について調べた。

#### 【0173】

先ず、作製した発光素子の初期特性を図10に示す。図10(a)は電流密度-輝度特性を、図10(b)は電圧-輝度特性を、図10(c)は輝度-電流効率特性を表す。その結果、7.6 Vの電圧を印加した時に、510 cd/m<sup>2</sup>の輝度で発光し、その時の発光効率は1.3 cd/Aであることが分かった。なお、発光スペクトルのピーク波長は640 nmであった。また、CIE色度座標は(x, y) = (0.70, 0.30)であり、Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(acac)に由来する極めて色純度の高い赤色発光を示すことが分かった。

#### 【0174】

次に、定電流駆動による連続点灯試験を行った。試験方法としては、初期状態において510 cd/m<sup>2</sup>の輝度で発光するために必要な電流密度(37.8 mA/cm<sup>2</sup>)の電流を一定時間流し続け、輝度の経時変化を調べた。その結果、1200時間経過時における輝度は、初期状態における輝度の90%を保っており、輝度の半減に至らなかった。このことから、本発明の発光素子は、発光時間に伴う輝度の減少が小さく、素子寿命が良好であることが分かる。

#### 【0175】

##### 《実施例4》

本実施例4では、画素部に本発明の発光素子を有する発光装置について図11を用いて説明する。なお、図11(A)は、発光装置を示す上面図、図11(B)は図11(A)中A-A'線断面図(A-A'で切断した断面図)である。点線で示された601は駆動回路部(ソース側駆動回路)、602は画素部、603は駆動回路部(ゲート側駆動回路)である。また、604は封止基板、605はシール材であり、シール材605で囲まれた内側607は、空間になっている。

#### 【0176】

なお、608は、ソース側駆動回路601およびゲート側駆動回路603に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となるFPC(フレキシブルプリントサーキット)709からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここではFPCしか図示していないが、このFPCにはプリント配線基盤(PWB)が取り付けられていてもよい。本発明の発光装置には、発光装置本体だけの場合はもちろん、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

#### 【0177】

次に、断面構造について図11(B)を用いて説明する。基板610上には駆動回路部および画素部が形成されているが、ここでは、駆動回路部であるソース側駆動回路601と、画素部602が示されている。



#### 【0178】

なお、ソース側駆動回路601はnチャネル型TFT623とpチャネル型TFT624とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路を形成するTFTは、公知のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成してもよい。また、本実施例では、基板上に駆動回路を形成したドライバー一体型を示しているが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に形成することもできる。

#### 【0179】

また、画素部602はスイッチング用TFT611と、電流制御用TFT612とそのドレインに電気的に接続された第1の電極613とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極613の端部を覆って絶縁物614が形成されている。ここでは、ポジ型の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成する。

#### 【0180】

また、成膜性を良好なものとするため、絶縁物614の上端部または下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにする。例えば、絶縁物614の材料としてポジ型の感光性アクリルを用いた場合、絶縁物614の上端部のみに曲率半径( $0.2\mu\text{m}\sim 3\mu\text{m}$ )を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物614として、感光性の光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、あるいは光によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる。さらには、絶縁物614の材料として有機物に限らず無機物が用いることができ、例えば酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。

#### 【0181】

第1の電極613上には、発光物質を含む層616、および第2の電極617がそれぞれ形成されている。ここで、陽極として機能する第1の電極613に用いる材料としては、仕事関数の大きい材料を用いることが望ましい。例えば、インジウムスズ酸化物からなる膜、酸化珪素を含むインジウムスズ酸化物からなる膜、インジウム亜鉛酸化物からなる膜、窒化チタン膜、クロム膜、タングステン膜、Zn膜、Pt膜などの単層膜の他、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜との積層、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜との3層構造等を用いることができる。なお、積層構造とすると、配線としての抵抗も低く、良好なオーミックコンタクトがとれ、さらに陽極として機能させることができる。

#### 【0182】

また、発光物質を含む層616は、蒸着マスクを用いた蒸着法、またはインクジェット法によって形成される。発光物質を含む層616には、本発明の有機金属錯体が含まれる。また、これらの有機金属錯体に組み合わせて用いる材料としては、低分子系材料、中分子材料（オリゴマー、デンドリマーを含む）、または高分子系材料であってもよい。また、発光物質を含む層に用いる材料としては、通常、有機化合物を単層もしくは積層で用いる場合が多いが、本発明においては、有機化合物からなる膜の一部に無機化合物を用いる構成も含めることとする。

#### 【0183】

さらに、発光物質を含む層616上に形成される第2の電極（陰極）617に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料、例えばAl、Ag、Li、Ca、またはこれらの合金であるMg:Ag、Mg:In、Al:Li、またはCaF<sub>2</sub>、CaN等の金属化合物を用いればよい。なお、発光物質を含む層616で生じた光が第2の電極617を透過させる場合には、第2の電極（陰極）617として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜（酸化インジウム酸化スズ合金（ITO）、酸化インジウム酸化亜鉛合金（In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZnO）、酸化亜鉛（ZnO）等）との積層を用いるのがよい。

#### 【0184】

さらに、シール材605で封止基板604を素子基板610と貼り合わせることで、素子基板601、封止基板604、およびシール材605で囲まれた空間607に発光素子618が備えられた構造になっている。なお、空間607には、不活性気体（窒素やアルゴン等）が充填される場合の他、シール材605で充填される構成も含むものとする。

#### 【0185】

なお、シール材605にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板604に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP（Fiberglass-Reinforced Plastics）、PVF（ポリビニルフロライド）、マイラー、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。

#### 【0186】

以上のようにして、本発明の発光素子を有する発光装置を得ることができる。以上のような、本発明を用いた発光装置は、本発明の発光素子の発光効率がよく長時間駆動が可能であることから、低消費電力であり、長寿命なものである。

#### 【0187】

##### 《実施例5》

本実施例5では、本発明で発光素子を有する発光装置を用いて完成させた様々な電気器具について説明する。本発明を適用した発光装置が低消費電力であり、長寿命なものであることから、当該発光装置を用いた電気器具においても、例えば表示部や照明部に係る電力を軽減し、長時間使用可能となる。

#### 【0188】

本発明を用いて形成される発光装置を用いて作製された電気器具として、テレビジョン、ビデオカメラ、デジタルカメラ、ゴーグル型ディスプレイ（ヘッドマウントディスプレイ）、ナビゲーションシステム、音響再生装置（カーオーディオ、オーディオコンボ等）、ノート型パーソナルコンピュータ、ゲーム機器、携帯情報端末（モバイルコンピュータ、携帯電話器、携帯型ゲーム機または電子書籍等）、記録媒体を備えた画像再生装置（具体的にはデジタルビデオディスク（DVD）等の記録媒体を再生し、その画像を表示する表示装置を備えた装置）、照明器具などが挙げられる。電気器具のいくつかの具体例を図12により説明する。本発明の発光装置を用いた電気器具はこれら例示の具体例に限定されない。

#### 【0189】

図12（A）は表示装置であり、筐体1001、支持台1002、表示部1003、スピーカー部1004、ビデオ入力端子1005等を含む。本発明を用いて形成される発光装置をその表示部1003に用いることにより作製される。なお、表示装置は、パソコン用、TV放送受信用、広告表示用などの全ての情報表示用装置が含まれる。

#### 【0190】

図12（B）はノート型パーソナルコンピュータであり、本体1201、筐体1202、表示部1203、キーボード1204、外部接続ポート1205、ポインティングマウス1206等を含む。本発明の発光素子を有する発光装置をその表示部1203に用いることにより作製される。

#### 【0191】

図12（C）はビデオカメラであり、本体1301、表示部1302、筐体1303、外部接続ポート1304、リモコン受信部1305、受像部1306、バッテリー1307、音声入力部1308、操作キー1309、接眼部1310等を含む。本発明の発光素子を有する発光装置をその表示部1302に用いることにより作製される。

#### 【0192】

図12（D）は卓上照明器具であり、照明部1401、傘1402、可変アーム1403、支柱1404、台1405、電源1406を含む。本発明の発光素子を用いて形成される発光装置を照明部1401に用いることにより作製される。なお、照明器具には天井固定型の照明器具または壁掛け型の照明器具なども含まれる。

#### 【0193】

また、図12（E）は携帯電話器（機）であり、本体1501、筐体1502、表示部1503、音声入力部1504、音声出力部1505、操作キー1506、外部接続ポ

ト 1 5 0 7、アンテナ 1 5 0 8 等を含む。本発明の発光素子を有する発光装置をその表示部 1 5 0 3 に用いることにより作製される。

【 0 1 9 4 】

以上のようにして、本発明の発光素子、発光装置を有する電気器具を得ることができる。また、以上のような本発明を用いた電気器具は、本発明の発光素子の発光効率がよく長時間駆動が可能であることから、低消費電力であり、長時間使用が可能であることから経済的でもある。

【図面の簡単な説明】

【 0 1 9 5 】

【図 1】 本発明の発光素子の素子構造を説明する図

【図 2】 本発明の発光素子の素子構造を説明する図

【図 3】 発光装置について説明する図

【図 4】 合成例 1 で得られた有機金属錯体の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを示す図

【図 5】 合成例 2 で得られた有機金属錯体の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを示す図

【図 6】 実施例 1 における発光素子の素子構造および作製方法を説明する図

【図 7】 実施例 1 で作製した発光素子の初期特性を示す図

【図 8】 実施例 2 におけるホスト材料を用いた発光素子の素子構造およびその作製方法を説明する図

【図 9】 実施例 2 で作製した発光素子の初期特性を示す図

【図 1 0】 実施例 3 で作製した発光素子の初期特性を示す図

【図 1 1】 画素部に本発明の発光素子を有する発光装置について説明する図

【図 1 2】 本発明を適用した電子器具の具体例について説明する図

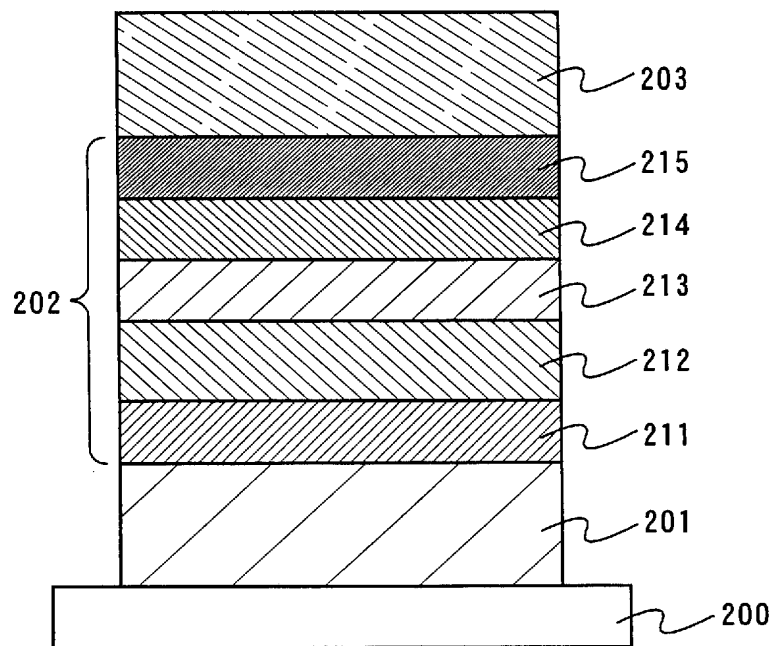
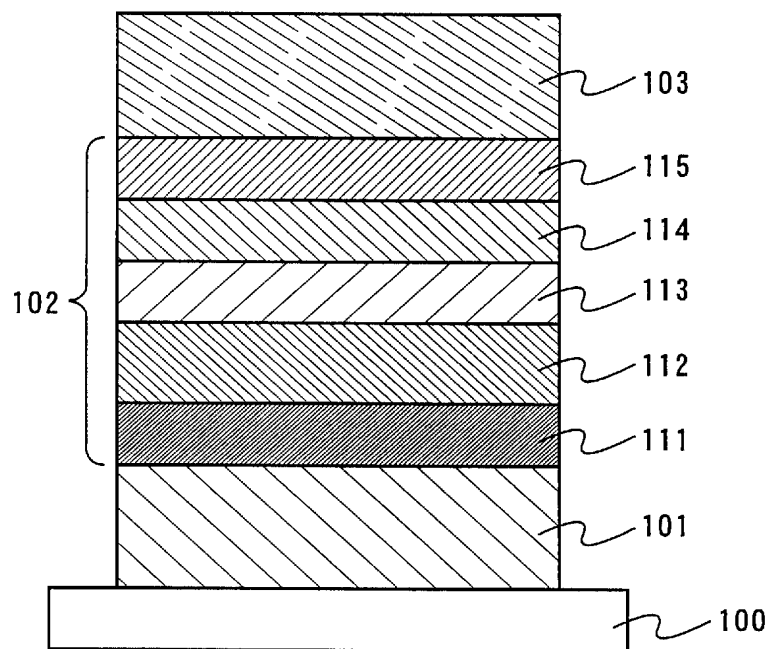
【符号の説明】

【 0 1 9 6 】

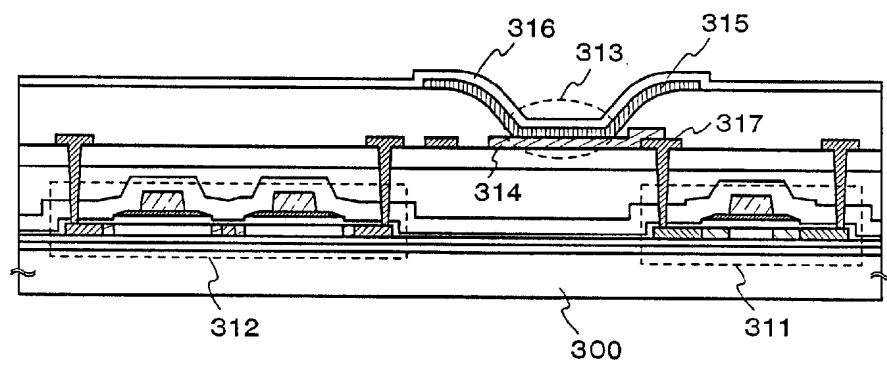
- 1 0 0 基板
- 1 0 1 第 1 の電極
- 1 0 2 発光物質を含む層
- 1 0 3 第 2 の電極
- 1 1 1 ホール注入層
- 1 1 2 ホール輸送層
- 1 1 3 発光層
- 1 1 4 ホールブロッキング層
- 1 1 5 電子輸送層
- 2 0 0 基板
- 2 0 1 第 1 の電極
- 2 0 2 発光物質を含む層
- 2 0 3 第 2 の電極
- 2 1 1 電子輸送層
- 2 1 2 ホールブロッキング層
- 2 1 3 発光層
- 2 1 4 ホール輸送層
- 2 1 5 ホール注入層
- 3 0 0 基板
- 3 1 1、3 1 2 T F T
- 3 1 3 発光素子
- 3 1 4 第 1 の電極
- 3 1 5 発光物質を含む層
- 3 1 6 第 2 の電極

3 1 7 配線  
4 0 0、5 0 0 基板  
4 0 1、5 0 1 第 1 の電極（陽極）  
4 0 2、5 0 2 発光物質を含む層  
4 0 3、5 0 3 第 2 の電極（陰極）  
4 1 1、5 1 1 ホール注入層  
4 1 2、5 1 2 ホール輸送層  
4 1 3、5 1 3 発光層  
4 1 4、5 1 4 電子輸送層  
4 1 5、5 1 5 電子注入層  
6 0 1 駆動回路部（ソース側駆動回路）  
6 0 2 画素部  
6 0 3 駆動回路部（ゲート側駆動回路）  
6 0 4 封止基板  
6 0 5 シール材  
6 0 7 シール材 6 0 5 で囲まれた内側  
6 0 8 配線  
6 1 0 基板  
6 1 1 スイッチング用 T F T  
6 1 2 電流制御用 T F T  
6 1 3 第 1 の電極  
6 1 4 絶縁物  
6 1 6 発光物質を含む層  
6 1 7 第 2 の電極  
6 1 8 発光素子  
6 2 3 n チャンネル型 T F T  
6 2 4 p チャンネル型 T F T  
7 0 9 外部入力端子となる F P C（フレキシブルプリントサーキット）  
1 0 0 1 筐体  
1 0 0 2 支持台  
1 0 0 3 表示部  
1 0 0 4 スピーカー部  
1 0 0 5 ビデオ入力端子  
1 2 0 1 本体  
1 2 0 2 筐体  
1 2 0 3 表示部  
1 2 0 4 キーボード  
1 2 0 5 外部接続ポート  
1 2 0 6 ポインティングマウス  
1 3 0 1 ビデオカメラ本体  
1 3 0 2 表示部  
1 3 0 3 筐体  
1 3 0 4 外部接続ポート  
1 3 0 5 リモコン受信部  
1 3 0 6 受像部  
1 3 0 7 バッテリー  
1 3 0 8 音声入力部  
1 3 0 9 操作キー  
1 3 1 0 接眼部  
1 4 0 1 卓上照明器具の照明部

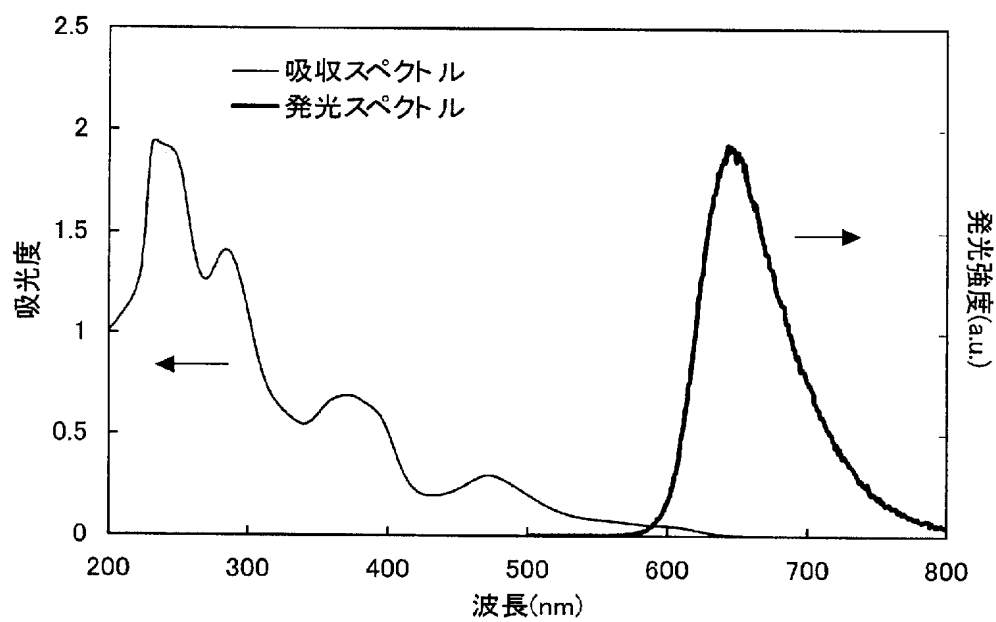
1 4 0 2	傘
1 4 0 3	可変アーム
1 4 0 4	支柱
1 4 0 5	台
1 4 0 6	電源
1 5 0 1	携帯電話器の本体
1 5 0 2	筐体
1 5 0 3	表示部
1 5 0 4	音声入力部
1 5 0 5	音声出力部
1 5 0 6	操作キー
1 5 0 7	外部接続ポート
1 5 0 8	アンテナ



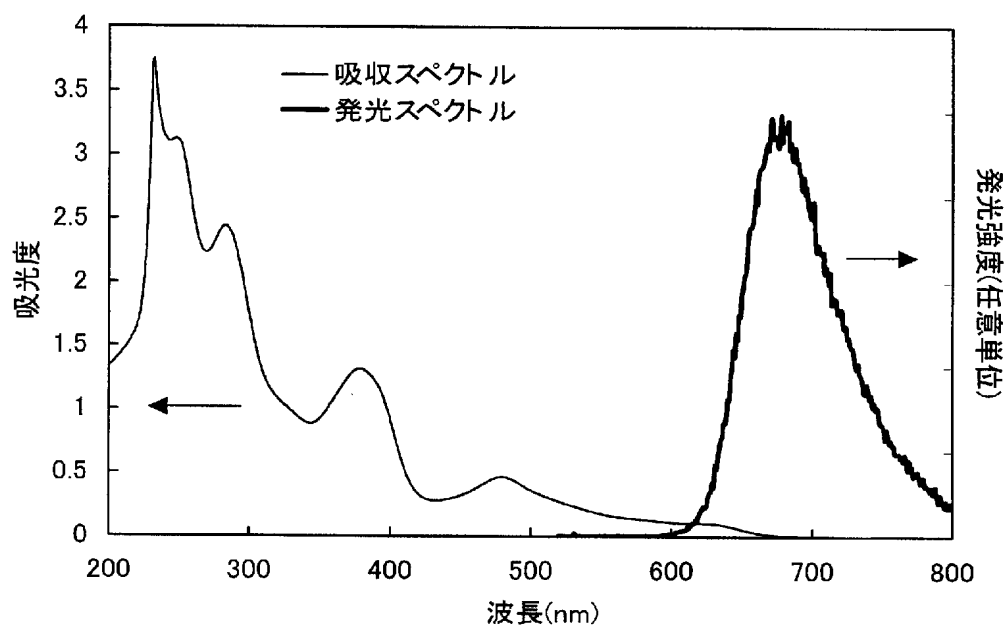
【図 3】



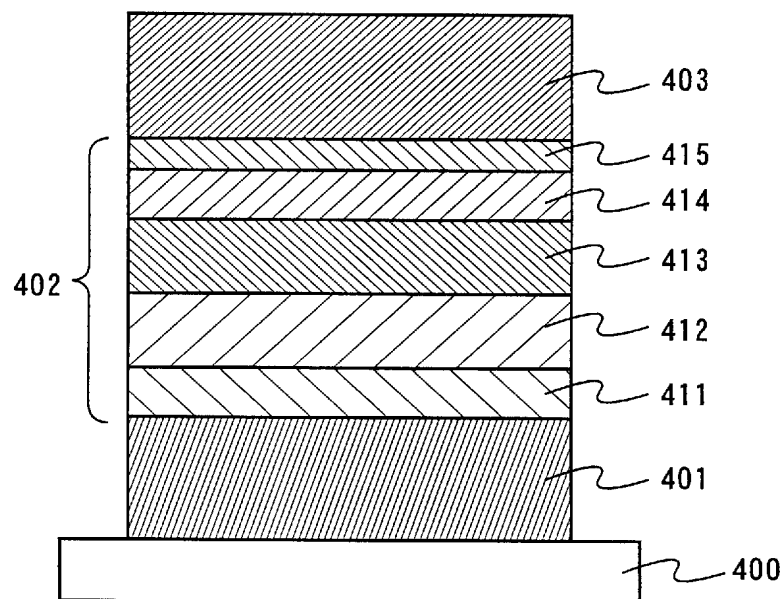
【図 4】



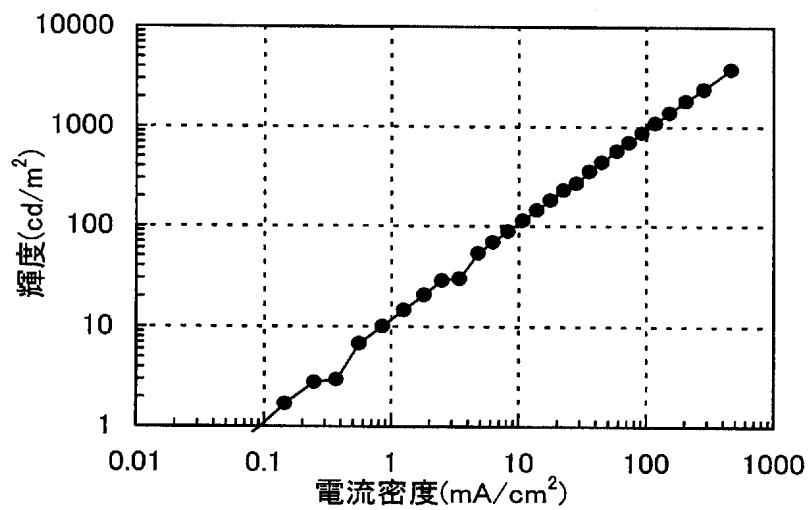
【図 5】



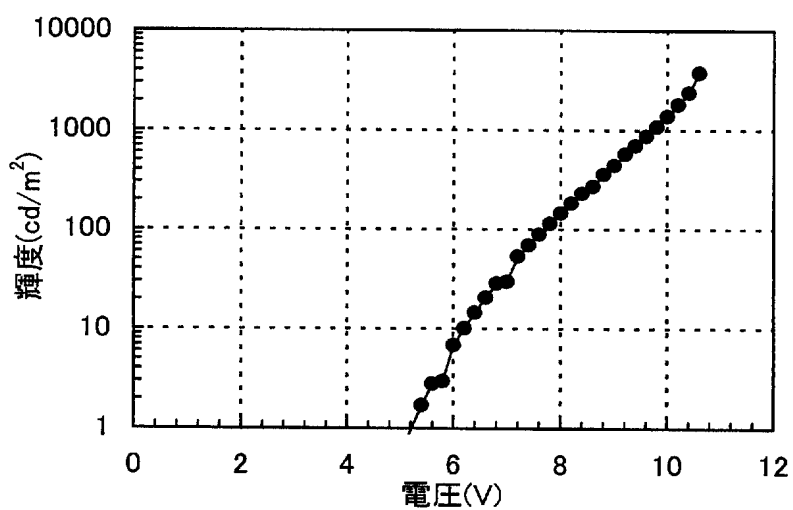
【図 6】



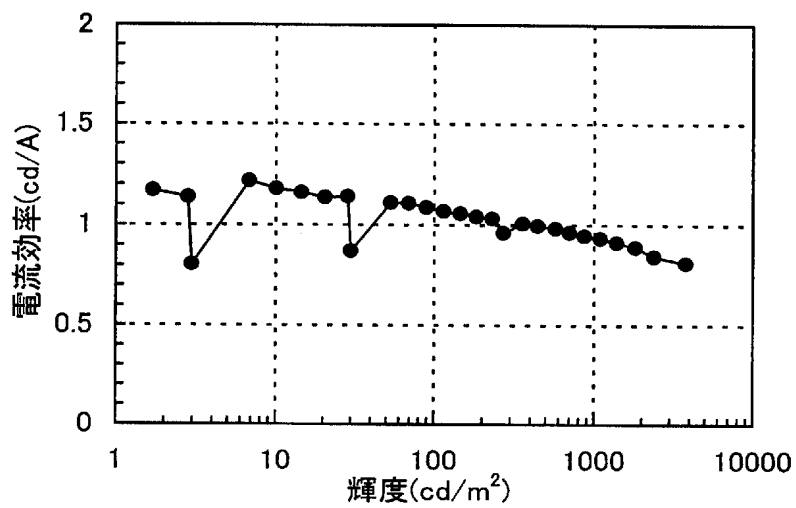




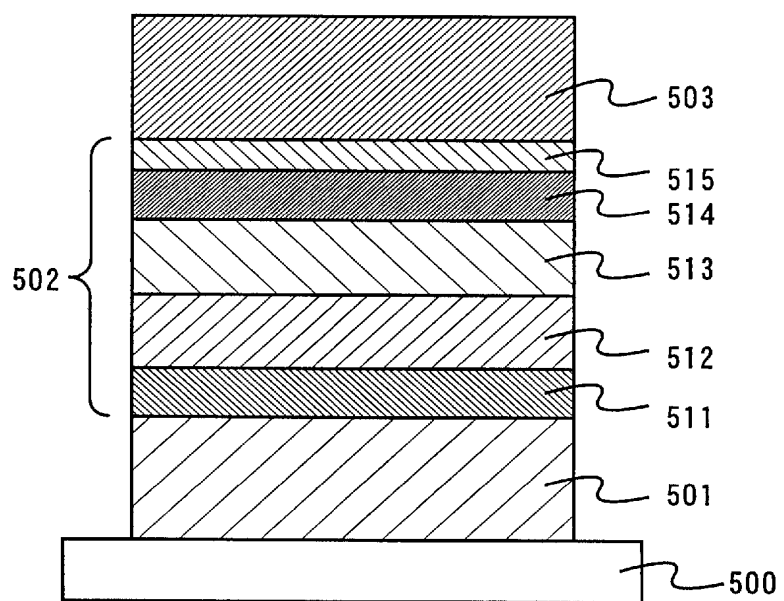
(a)

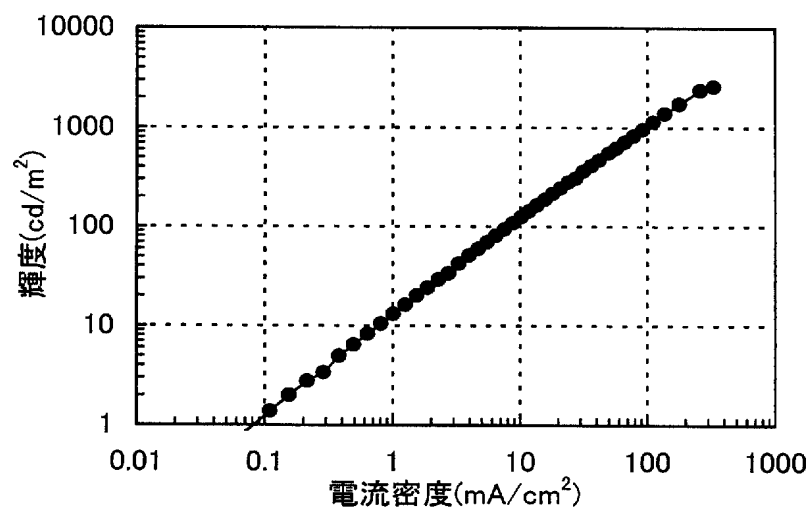


(b)

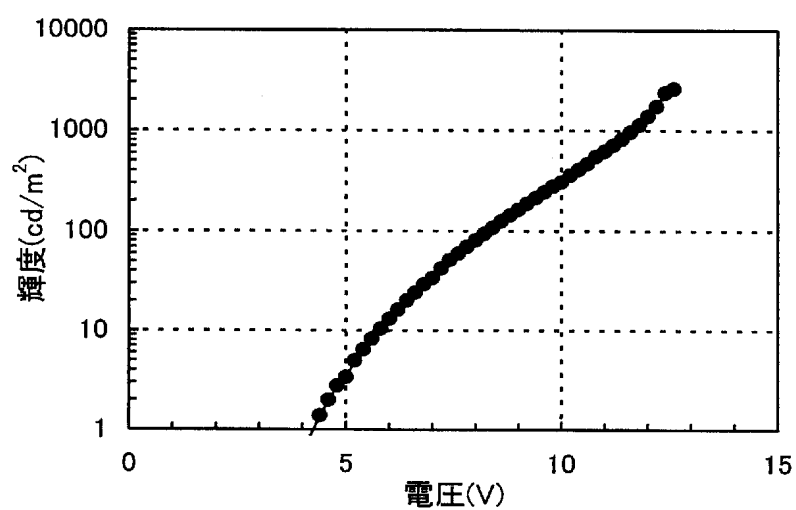


(c)

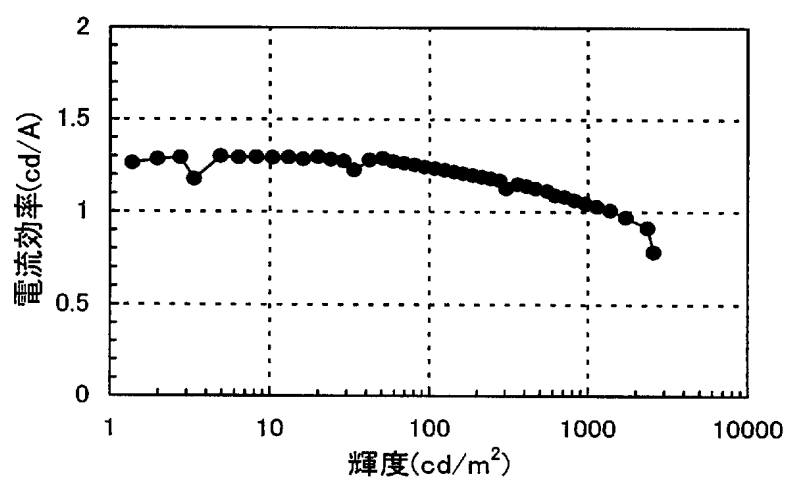




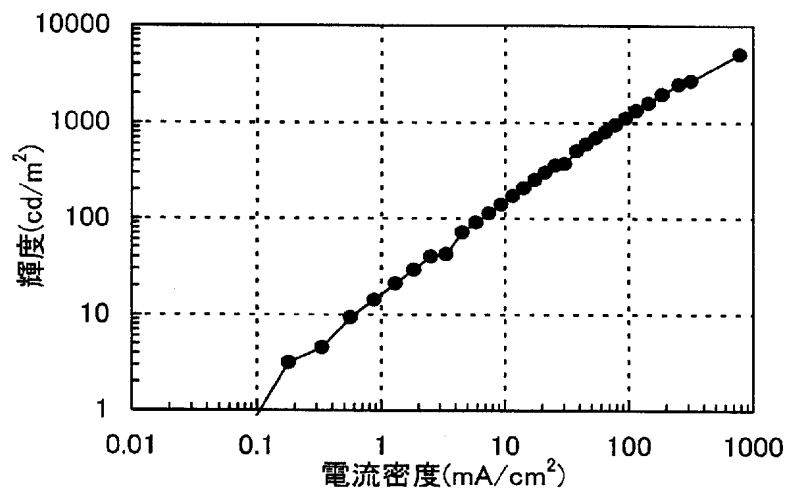
(a)



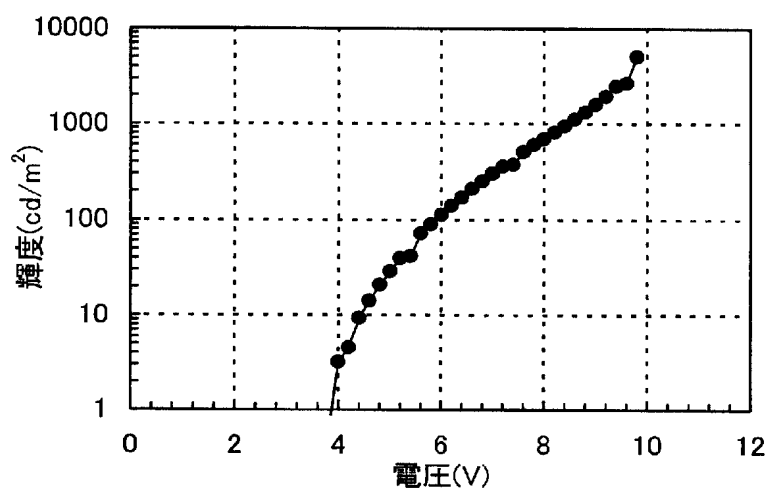
(b)



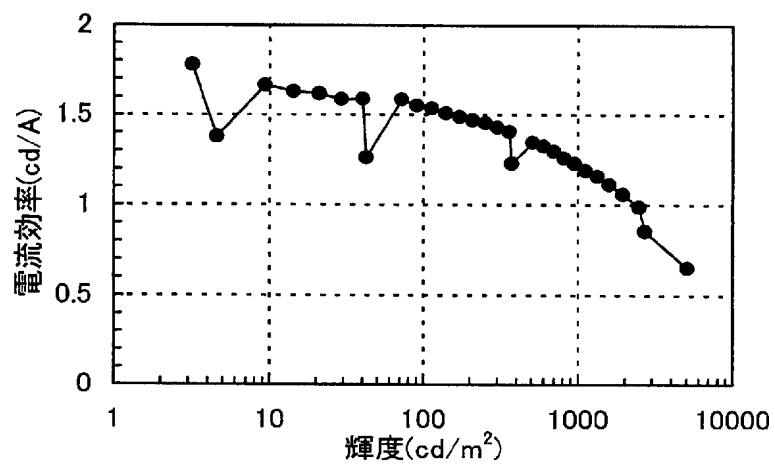
(c)



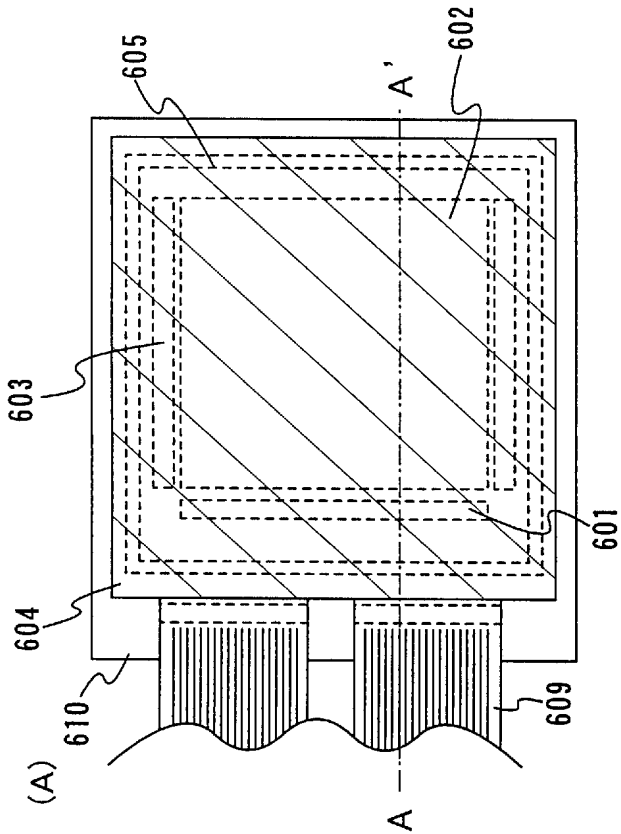
(a)



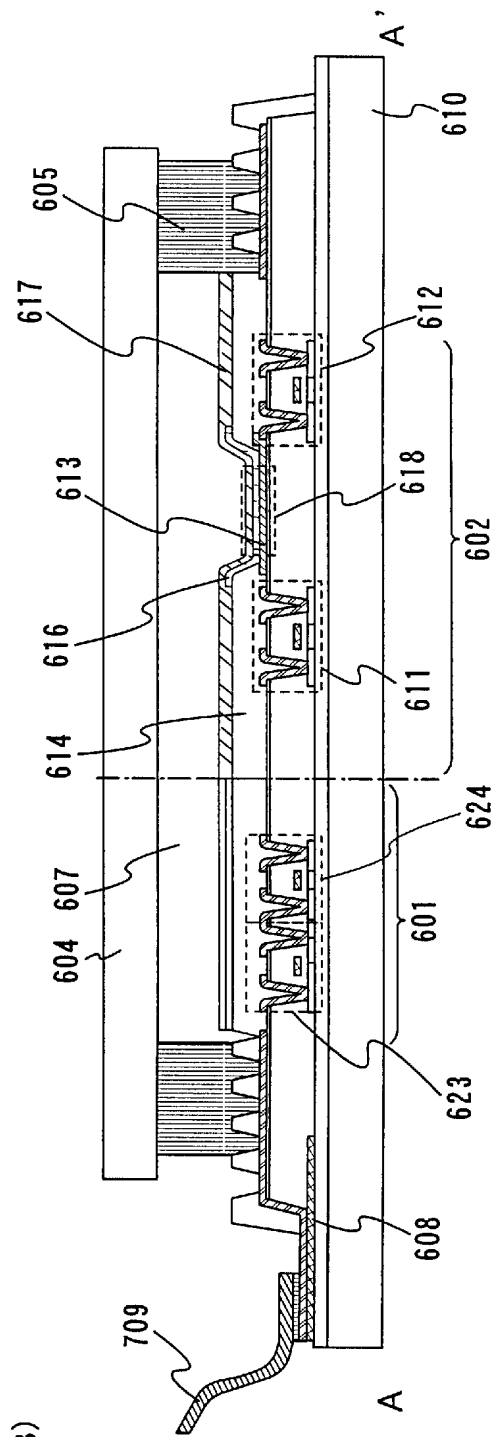
(b)

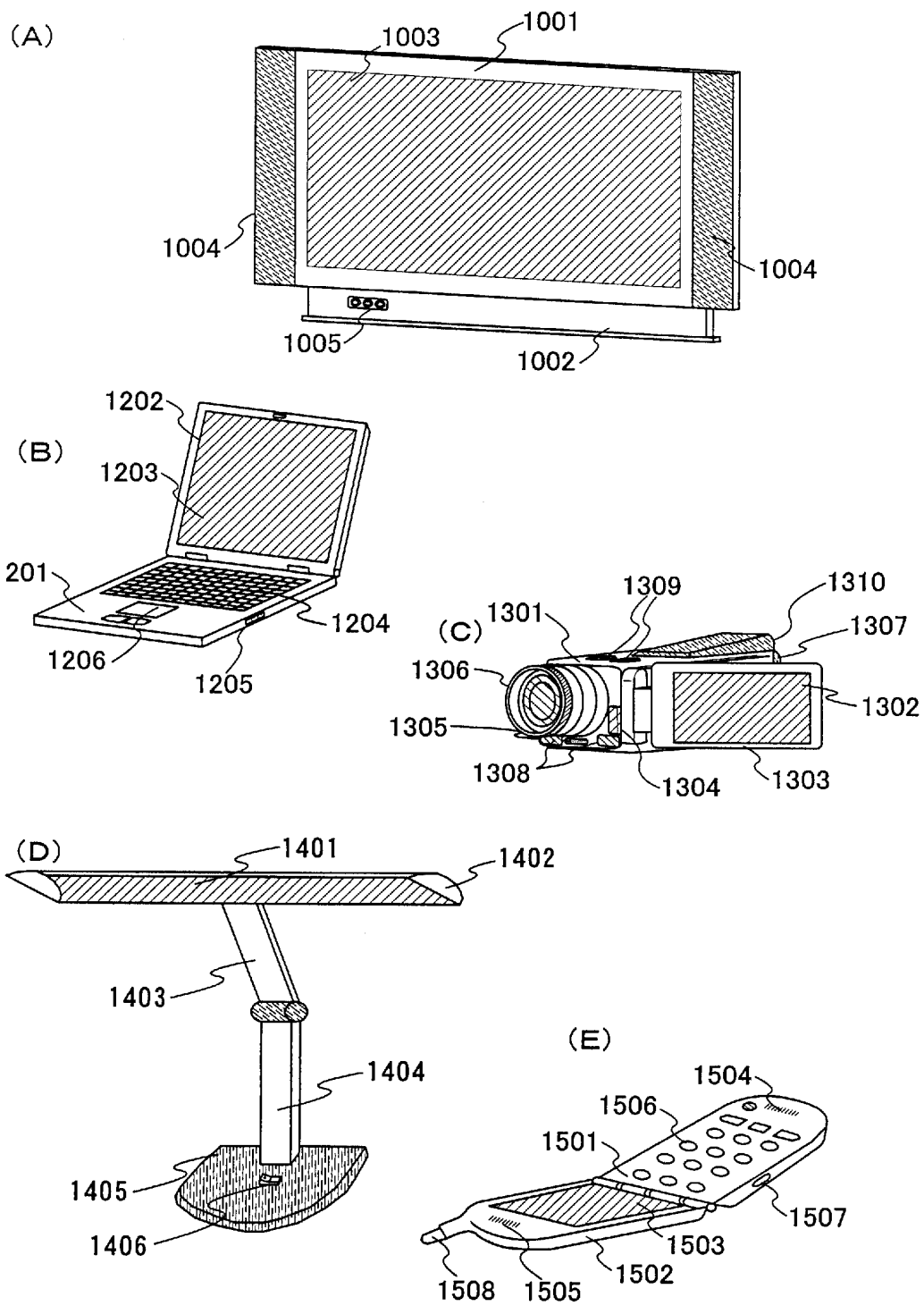


(c)



(B)





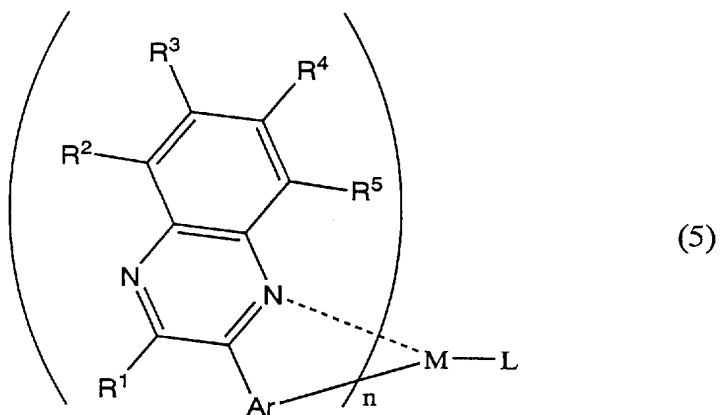
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 長時間駆動を可能とした、発光効率が高く素子寿命の良好な発光素子およびその発光素子を用いた発光装置を得る。

【解決手段】 陽極及び陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に下記一般式（５）で表される有機金属錯体と、該有機金属錯体よりもエネルギーギャップが大きい化合物又は又は該有機金属錯体よりもイオン化ポテンシャルが大きく且つ電子親和力が小さい化合物とを含む発光層とを有する発光素子およびその発光素子を用いた発光装置。

【化５】



【選択図】 図 1

## 出願人履歴

0 0 0 1 5 3 8 7 8

19900817

新規登録

神奈川県厚木市長谷3 9 8番地

株式会社半導体エネルギー研究所